

XP-002253607

AN - 2000-174252 [16]

AP - JP19980171138 19980618

CPY - MITA

DC - A17 A60 E12

FS - CPI

IC - C08F470 ; C08F10/00

MC - A02-A06 A02-A07A A04-G01A E05-B03 E05-L E05-M E05-N

M3 - [01] A313 A923 A940 B405 B505 B712 B720 B741 B803 B831 C000 C100 C101
C108 C550 C720 C801 C802 C803 C804 C805 C807 G010 G020 G021 G030 G039
G040 G050 G100 G111 G221 G553 G563 G599 M126 M144 M210 M211 M212 M213
M214 M215 M216 M220 M221 M222 M223 M224 M231 M232 M233 M250 M280 M281
M282 M320 M411 M510 M520 M530 M531 M540 M541 M542 M620 M640 M782 M903
M904 Q121; 0016-IPB04-K 0016-IPB04-M

- [02] A400 A426 A500 A600 A940 A960 B415 B514 B515 B614 B615 B720 B731
B732 B743 B744 B793 B813 B831 B832 B834 C000 C009 C017 C035 C053 C100
C101 C116 C216 C550 C710 C720 C801 C802 C803 C804 C805 C806 C807 D021
D029 D621 D699 F010 F011 F012 F013 F015 F016 F019 F020 F021 F029 F211
F299 F421 F423 F431 F450 F499 F570 F730 G010 G014 G016 G017 G019 G020
G021 G029 G030 G039 G100 G111 G112 G113 G221 G299 G310 G331 G399 G563
G599 H102 H103 H181 H201 H211 H342 H343 H541 H542 H600 H601 H602 H608
H609 H641 H642 H643 H681 H682 H683 H685 H689 J011 J012 J231 J232 J341
J342 K0 K340 K351 K399 K431 K630 K699 K840 K899 L110 L120 L199 L3 L353
L355 L399 L410 L431 L432 L461 L463 L499 L943 L999 M121 M123 M126 M129
M131 M135 M139 M141 M144 M149 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220
M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M262 M263 M272 M273
M280 M281 M282 M283 M311 M312 M313 M314 M315 M316 M320 M321 M322 M323
M331 M332 M333 M334 M340 M342 M343 M344 M349 M352 M362 M371 M372 M373
M381 M382 M391 M392 M393 M411 M510 M511 M512 M520 M521 M522 M523 M530
M531 M532 M533 M540 M541 M542 M620 M630 M640 M782 M903 M904 Q121;
00088 00096; 0016-IPB01-K 0016-IPB01-M

- [03] A400 A426 A500 A600 A923 B415 B514 B515 B614 B615 B720 B731 B732
B743 B744 B793 B813 B831 B832 B834 C000 C116 C216 D021 D029 D621 D699
F011 F012 F013 F015 F016 F019 F020 F021 F029 F211 F299 F421 F423 F431
F450 F499 F570 F730 G010 G014 G016 G017 G019 G020 G021 G029 G030 G039
G100 G111 G112 G113 G221 G299 G310 G331 G399 G563 G599 H102 H103 H181
H201 H211 H342 H343 H541 H542 H601 H602 H608 H609 H641 H642 H643 H681
H682 H683 H689 J011 J012 J231 J232 J341 J342 K340 K351 K399 K630 K699
K840 K899 L110 L120 L199 L353 L355 L399 L410 L431 L432 L461 L463 L499
L943 L999 M121 M123 M126 M129 M131 M135 M139 M141 M144 M149 M210 M211
M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232
M233 M240 M250 M262 M263 M272 M273 M280 M281 M282 M283 M311 M312 M313
M314 M315 M316 M320 M321 M322 M323 M331 M332 M333 M334 M340 M342 M343
M344 M349 M352 M361 M362 M371 M372 M373 M381 M382 M391 M392 M393 M411
M510 M511 M512 M520 M521 M522 M523 M530 M531 M532 M533 M540 M541 M542
M620 M782 M903 M904 Q121; 00088 00096; 0016-IPB02-K 0016-IPB02-M

- [04] A426 A940 A960 C017 C100 C710 C720 C801 C803 C804 C805 C806 C807
D012 D019 D621 D699 F011 F012 F013 F015 F019 F421 F423 F431 F499 F570
F730 G010 G100 H211 M1 M116 M119 M280 M311 M320 M321 M342 M373 M391
M411 M510 M511 M512 M521 M522 M523 M530 M531 M540 M630 M640 M782 M903
M904 Q121; 00088 00096; 0016-IPB03-K 0016-IPB03-M

DA - (MITA) MITSUI CHEM INC

PN - JP2000001513 A 20000107 DW200016 C08F4/70 055pp

PR - JP19980171138 19980618

XA - C2000-054420

XIC - C08F-004/70 ; C08F-010/00

AB - JP2000001513 A catalyst for olefin comprising (A) a transition metal imine compound, (B) an organoaluminumoxy compound containing an organoboron or clay, a clay mineral or an ion-exchange layer compound, and an organometallic compound is new.

- DETAILED DESCRIPTION - The transition metal imine has formula (I) and the organoboron is of formula (R32)2Al-O-B(R31)-O-Al(R32)2 (II).

- M = 8-11 group transition metal; R1- R4 = H, halo, halogenated hydrocarbon group, hydrocarbon group, heterocyclic residue, or O-, N-, Si-, Ge- or Sn-containing group; R5, R6 = R1 except H; R1 and R5, R2 and R6, R1 and R3, R2 and R4 or R3 and R4 may form a ring; X = H, halo, 1-20C hydrocarbon group or halogenated hydrocarbon group, or O-, S- or Si-containing group; Y = Group 15 or 16 atom.

- R31 = 1-10C hydrocarbon group; R32 = H, halo or 1-10C hydrocarbon group

- Also claimed is an olefin polymerisation comprising polymerising or copolymerising olefin in the presence of the catalyst for olefin polymerisation.

- ADVANTAGE - The catalyst has an excellent olefin polymerisation activity and provides polymers having a narrow molecular wt. distribution.

- (Dwg.1/1)

CN - 0016-IPB04-K 0016-IPB04-M 0016-IPB01-K 0016-IPB01-M 0016-IPB02-K 0016-IPB02-M 0016-IPB03-K 0016-IPB03-M

IW - CATALYST OLEFIN POLYMERISE COMPRISE TRANSITION METAL IMINE COMPOUND COMPOUND CONTAIN CLAY CLAY MINERAL ION EXCHANGE LAYER COMPOUND COMPOUND

IKW - CATALYST OLEFIN POLYMERISE COMPRISE TRANSITION METAL IMINE COMPOUND COMPOUND CONTAIN CLAY CLAY MINERAL ION EXCHANGE LAYER COMPOUND COMPOUND

NC - 001

OPD - 1998-06-18

ORD - 2000-01-07

PAW - (MITA) MITSUI CHEM INC

RRL - 00088 00096

TI - Catalyst for olefin polymerisation comprising transition metal imine compound, - organoaluminumoxy compound containing B or clay, clay mineral or ion-exchange layer compound, and organometallic compound

A01 - [001] 018 ; G0033-R G0022 D01 D02 D51 D53 ; H0000 ; L9999 L2573 L2506 ; P1150

- [002] 018 ; R00326 G0044 G0033 G0022 D01 D02 D12 D10 D51 D53 D58 D82 ; H0000 ; L9999 L2573 L2506 ; P1150 ; P1161

- [003] 018 ; ND02 ; B9999 B5107-R B4977 B4740 ; B9999 B3678 B3554

- [004] 018 ; Tr-R 7A-R D01 D22-R N- 5A O- 6A Si 4A Ge Sn D69 F15 D81 D82 D83 D84 D85 D86 D87 D88 D89 D90 D91 D92 D93 D94 8B-R Tr 9A-R 9B-R ; C999 C033 C000 ; C999 C293

- [005] 018 ; D01 D68 D81 D82 D83 D84 D85 D86 D87 D88 D89 D90 D91 D92 D93 D94 D69 Al 3A B- D50 ; R24064 D01 D11 D10 D50 D68 D70 D88 Al 3A Cl 7A ; C999 C124 C113 ; C999 C293

- [006] 018 ; D01 D11 D10 D60 D84 B- 3A O- 6A ; R00728 D01 D11 D10 D50 D68 D92 Al 3A ; C999 C157 ; C999 C124 C113 ; C999 C293

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-1513

(P2000-1513A)

(43) 公開日 平成12年1月7日 (2000.1.7)

(51) Int.Cl.⁷

識別記号

F I

テーマコード(参考)

C 0 8 F 4/70
10/00

C 0 8 F 4/70
10/00

4 J 0 2 8

審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全 55 頁)

(21) 出願番号 特願平10-171138

(22) 出願日 平成10年6月18日 (1998.6.18)

(71) 出願人 000005887

三井化学株式会社

東京都千代田区霞が関三丁目2番5号

(72) 発明者 土肥 靖

山口県玖珂郡和木町和木六丁目1番2号

三井化学株式会社内

(72) 発明者 松居 成和

山口県玖珂郡和木町和木六丁目1番2号

三井化学株式会社内

(72) 発明者 藤田 照典

山口県玖珂郡和木町和木六丁目1番2号

三井化学株式会社内

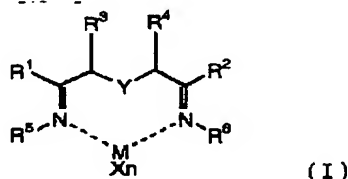
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 オレフィン重合用触媒およびオレフィンの重合方法

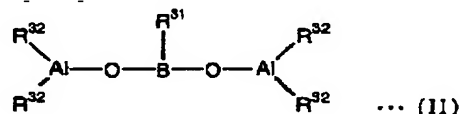
(57) 【要約】 (修正有)

【課題】優れたオレフィン重合活性を有するオレフィン重合用触媒およびその触媒を用いたオレフィンの重合方法。

【解決手段】(A) 下記一般式(I)で表される遷移金属イミン化合物と、



(M: 周期律表第8~11族の遷移金属原子、R¹~R⁶: 炭化水素基等、Y: 周期律表第15、16族の元素、n: Mの価数 X: ハロゲン等。)(B) (B-1) 下記一般式(II)で表されるホウ素含有有機アルミニウムオキシ化合物

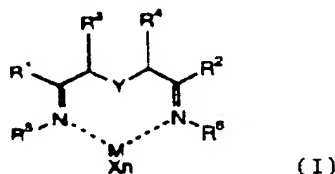


(R³¹、R³²は、炭化水素基等。)(B-2) 粘土、粘土鉱物もしくはイオン交換性層状化合物と、必要に応じて (C) 有機金属化合物とからなるオレフィン重合用触媒、およびそのオレフィン重合用触媒を用いるオレフィンの重合方法。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式 (I) で表される遷移金属イミン化合物

【化1】

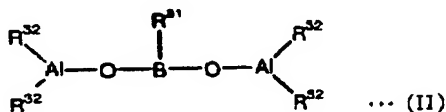


(式中、Mは周期表第8～11族の遷移金属原子を示し、R¹～R³は、互いに同一でも異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子、ハロゲン化炭化水素基、炭化水素基、ヘテロ環式化合物残基、酸素含有基、窒素含有基、ホウ素含有基、硫黄含有基、リン含有基、ケイ素含有基、ゲルマニウム含有基またはスズ含有基を示し、R⁴、R⁵は、互いに同一でも異なってもよく、ハロゲン原子、ハロゲン化炭化水素基、炭化水素基、ヘテロ環式化合物残基、酸素含有基、窒素含有基、ホウ素含有基、硫黄含有基、リン含有基、ケイ素含有基、ゲルマニウム含有基またはスズ含有基を示し、またR¹とR⁵が互いに連結して環を形成していてもよく、R²とR⁶が互いに連結して環を形成していてもよく、R¹とR³が互いに連結して環を形成していてもよく、R²とR⁴が互いに連結して環を形成していてもよく、R³とR⁴が互いに連結して環を形成していてもよく、nは、Mの価数を示し、

Xは、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数1～20の炭化水素基、炭素原子数1～20のハロゲン化炭化水素基、酸素含有基、イオウ含有基、ケイ素含有基を示し、nが2以上の場合には、Xで示される複数の基は互いに同一でも異なってもよい。Yは周期表第15または16族の原子を示す。)

(B) (B-1) 下記一般式 (II) で表されるホウ素含有有機アルミニウムオキシ化合物、

【化2】



(式中、R³¹は炭素原子数が1～10の炭化水素基であり、R³²は、互いに同一でも異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子または炭素原子数が1～10の炭化水素基を示す。) または (B-2) 粘土、粘土鉱物もしくはイオン交換性層状化合物と、必要に応じて

(C) 有機金属化合物とからなることを特徴とするオレフィン重合用触媒

【請求項2】 請求項1に記載のオレフィン重合用触媒の存在下に、オレフィンを重合または共重合させることを特徴とするオレフィンの重合方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、新規なオレフィン重合用触媒および該オレフィン重合用触媒を用いたオレフィンの重合方法に関するものである。

【0002】

【発明の技術的背景】 オレフィン重合用触媒としては、いわゆるカミンスキー触媒がよく知られている。この触媒は非常に重合活性が高く、分子量分布が狭い重合体を得られるという特徴がある。このようなカミンスキー触媒に用いられる遷移金属化合物としては、たとえばビス(シクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド(特開昭58-19309号公報)や、エチレンビス(4,5,6,7-テトラヒドロインデニル)ジルコニウムジクロリド(特開昭61-130314号公報)などが知られている。また重合に用いる遷移金属化合物が異なると、オレフィン重合活性や得られたポリオレフィンの性状が大きく異なることも知られている。

【0003】 さらに最近新しいオレフィン重合用触媒としてたとえば特開平8-245713号公報には、チタン-窒素結合を有するチタンアミド化合物とアルミノキサンからなるオレフィン重合用触媒が提案されている。また、Organometallics 1996, 15, 562-569 には、[Mes₂BNCH₂CH₂NBMes₂]-2で示されるビス(ポリルアミド)配位子を有する周期表4族の有機金属錯体が記載され、この錯体はエチレン重合活性を僅かに示すことが記載されている。

【0004】 ところで一般にポリオレフィンは、機械的特性などに優れているため、各種成形体用など種々の分野に用いられているが、近年ポリオレフィンに対する物性の要求が多様化しており、様々な性状のポリオレフィンが望まれている。また生産性の向上も望まれている。このような状況のもと遷移金属アミド化合物を含む触媒を用いて高い重合活性で、優れた性状を有するポリオレフィンを製造する方法の出現が望まれている。

【0005】

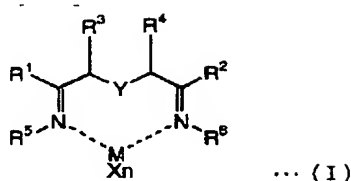
【発明の目的】 本発明は、優れたオレフィン重合活性を有するオレフィン重合用触媒および該触媒を用いたオレフィンの重合方法を提供することを目的とする。

【0006】

【発明の概要】 本発明に係るオレフィン重合用方法は (A) 下記一般式 (I) で表される遷移金属イミン化合物と、

【0007】

【化3】



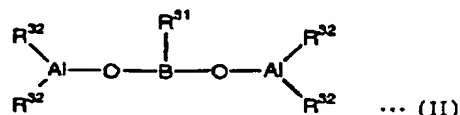
【0008】(式中、Mは周期表第8～11族の遷移金属原子を示し、R¹～R⁴は、互いに同一でも異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子、ハロゲン化炭化水素基、炭化水素基、ヘテロ環式化合物残基、酸素含有基、窒素含有基、ホウ素含有基、硫黄含有基、リン含有基、ケイ素含有基、ゲルマニウム含有基またはスズ含有基などを示し、R⁵、R⁶は、互いに同一でも異なってもよく、ハロゲン原子、ハロゲン化炭化水素基、炭化水素基、ヘテロ環式化合物残基、酸素含有基、窒素含有基、ホウ素含有基、硫黄含有基、リン含有基、ケイ素含有基、ゲルマニウム含有基またはスズ含有基などを示し、またR¹とR²が互いに連結して環を形成していてもよく、R¹とR³が互いに連結して環を形成していてもよく、R¹とR⁴が互いに連結して環を形成していてもよく、R²とR³が互いに連結して環を形成していてもよく、R⁵とR⁶が互いに連結して環を形成していてもよく、nは、Mの価数を示し、Xは、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数1～20の炭化水素基、炭素原子数1～20のハロゲン化炭化水素基、酸素含有基、イオウ含有基、ケイ素含有基などを示し、nが2以上の場合には、Xで示される複数の基は互いに同一でも異なってもよい。

【0009】Yは周期表第15または16族の原子を示す。

(B) (B-1) 下記一般式(II)で表されるホウ素含有有機アルミニウムオキシ化合物、

【0010】

【化1】



【0011】(式中、R³¹は炭素原子数が1～10の炭化水素基であり、R³²は、互いに同一でも異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子または炭素原子数が1～10の炭化水素基である。)または(B-2) 粘土、粘土鉱物もしくはイオン交換性層状化合物と、必要に応じて(C) 有機金属化合物とからなることを特徴としている。

【0012】本発明に係るオレフィンの重合方法は、前記のような触媒の存在下に、オレフィンを重合または共重合させることを特徴としている。

【0013】

【発明の具体的な説明】以下、本発明に係るオレフィン

重合用触媒およびこの触媒を用いたオレフィンの重合方法について具体的に説明する。なお、本明細書において「重合」という語は、単独重合だけでなく、共重合をも包含した意味で用いられることがあり、「重合体」という語は、単独重合体だけでなく、共重合体をも包含した意味で用いられることがある。

【0014】本発明では、(A) 下記一般式(I)で表される遷移金属イミン化合物と、(B) (B-1) ホウ素含有有機アルミニウムオキシ化合物、または(B-2) 粘土、粘土鉱物もしくはイオン交換性層状化合物必要に応じて(C) 有機金属化合物とから形成されている。

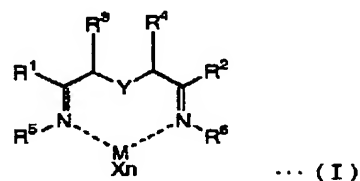
【0015】まず、本発明で用いられるオレフィン重合用触媒を形成する各成分について説明する。

(A) 遷移金属イミン化合物

本発明で用いられる(A) 遷移金属イミン化合物は、下記一般式(I)で表される遷移金属イミン化合物である。

【0016】

【化5】



【0017】式中、Mは周期表第8～11族の遷移金属原子を示し、鉄、ルテニウム、オスニウム、コバルト、ロジウム、イリジウムなどの周期表第8、9族の遷移金属原子であることが好ましく、特に鉄、コバルトが好ましい。R¹～R⁴は、互いに同一でも異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子、炭化水素基、ハロゲン化炭化水素基、ヘテロ環式化合物残基、酸素含有基、窒素含有基、ホウ素含有基、硫黄含有基、リン含有基、ケイ素含有基、ゲルマニウム含有基またはスズ含有基などを示す。

【0018】ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。炭化水素基として具体的には、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、イソブチル、sec-ブチル、tert-ブチル、ペンチル、ヘキシルなどの炭素原子数が1～20の直鎖または分岐状のアルキル基；フェニル、ナフチル、アントリルなどの炭素原子数が6～20のアリール基；これらのアリール基に前記炭素原子数が1～20のアルキル基などの置換基が1～5個置換した置換アリール基；シクロペンチル、シクロヘキシル、ノルボルニル、アダマンチルなどのシクロアルキル基；ビニル、プロペニル、シクロヘキセニルなどのアルケニル基；ベンジル、フェニルエチル、フェニルプロピルなどのアリールアルキル基などが挙げられるが、これらに限定されるものではない。ハロゲン化炭化水素基としては、前記炭化水素基にハロゲ

ンが置換した基が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0019】ヘテロ環化合物としては、含窒素複素環、含酸素複素環、含イオウ複素環等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。酸素含有基としては、アルコキシ基、アリーロキシ基、エステル基、エーテル基、アシル基、カルボキシ基、カルボナート基、ヒドロキシ基、ペルオキシ基、酸無水物等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。窒素含有基としては、アミノ基、イミノ基、アミド基、イミド基、ヒドラジノ基、ヒドラゾノ基、ニトロ基、ニトロソ基、シアノ基、イソシアノ基、シアン酸エステル基、アミジノ基、ジアゾ基、及び、アンモニウム塩等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。ホウ素含有基としてはボランジイル基、ボラントリイル基、ジボランニル基等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。イオウ含有基としては、メルカプト基、チオエステル基、ジチオエステル基、チオアルコキシ基、チオアリーロキシ基、チオアシル基、チオエーテル基、チオシアン酸エステル基、イソチアン酸エステル基、スルホンエステル基、スルホンアミド基、チオカルボキシ基、ジチオカルボキシ基、スルホ基、スルホニル基、スルフィニル基、スルフェニル基等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0020】リン含有基としては、ホスフィド基、ホスホリル基、チオホスホリル基、ホスファート基等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。ケイ素含有基としては、炭化水素置換シリル基、炭化水素置換シリルのシリルエーテル基、ケイ素置換アルキル基、ケイ素置換アリール基等が挙げられるが、これに限定されるものではない。

【0021】ゲルマニウム含有基としては、炭化水素置換ゲルマニウム基、炭化水素置換ゲルマニウムのゲルマニウムエーテル基、ゲルマニウム置換アルキル基、ゲルマニウム置換アリール基等が挙げられるが、これに限定されるものではない。スズ含有基としては、炭化水素置換スタニル基、炭化水素置換スズのスタニルエーテル基、スズ置換アルキル基、スズ置換アリール基等が挙げられるが、これに限定されるものではない。また R^1 と R^5 、 R^2 と R^6 、 R^1 と R^3 、 R^2 と R^4 、 R^3 と R^5 各々が互いに連結して芳香族環、脂肪族環や窒素原子や硫黄原子、酸素原子などの異原子を含む炭化水素環を形成していてもよく、これらの環はさらに置換基を有してもよい。 n は、 M の価数を満たす数であり、具体的には1～8、好ましくは1～5、より好ましくは1～3の整数である。 X は、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数1～20の炭化水素基、炭素原子数1～20のハロゲン化炭化水素基、酸素含有基、イオウ含有基、ケイ素含有基を示し、 n が2以上の場合には、 X で示される複数の基は互いに同一でも異なってもよい。

【0022】ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。炭素原子数が1～20の炭化水素基としては、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アリールアルキル基、アリール基などが挙げられ、より具体的には、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ヘキシル、オクチル、ノニル、ドデシル、アイコシルなどのアルキル基；シクロペンチル、シクロヘキシル、ノルボルニル、アダマンチルなどのシクロアルキル基；ビニル、プロペニル、シクロヘキセニルなどのアルケニル基；ベンジル、フェニルエチル、フェニルプロピルなどのアリールアルキル基；フェニル、トリル、ジメチルフェニル、トリメチルフェニル、エチルフェニル、プロピルフェニル、ビフェニル、ナフチル、メチルナフチル、アントリル、フェナントリルなどのアリール基が挙げられる。

【0023】炭素原子数が1～20のハロゲン化炭化水素基としては、前記炭素原子数が1～20の炭化水素基にハロゲンが置換した基が挙げられる。酸素含有基としては、ヒドロキシ基；メトキシ、エトキシ、プロポキシ、ブトキシなどのアルコキシ基；フェノキシ、メチルフェノキシ、ジメチルフェノキシ、ナフトキシなどのアリーロキシ基；フェニルメトキシ、フェニルエトキシなどのアリールアルコキシ基などが挙げられる。

【0024】イオウ含有基としては、前記酸素含有基の酸素がイオウに置換した置換基、ならびにメチルスルフォネート、トリフルオロメタンスルフォネート、フェニルスルフォネート、ベンジルスルフォネート、 p -トルエンスルフォネート、トリメチルベンゼンスルフォネート、トリイソブチルベンゼンスルフォネート、 p -クロルベンゼンスルフォネート、ペンタフルオロベンゼンスルフォネートなどのスルフォネート基；メチルスルフィネート、フェニルスルフィネート、ベンジルスルフィネート、 p -トルエンスルフィネート、トリメチルベンゼンスルフィネート、ペンタフルオロベンゼンスルフィネートなどのスルフィネート基が挙げられる。

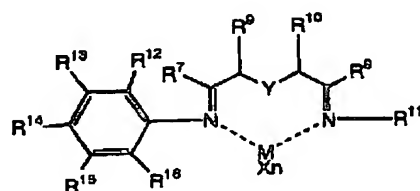
【0025】ケイ素含有基としては、メチルシリル、フェニルシリルなどのモノ炭化水素置換シリル；ジメチルシリル、ジフェニルシリルなどのジ炭化水素置換シリル；トリメチルシリル、トリエチルシリル、トリプロピルシリル、トリシクロヘキシルシリル、トリフェニルシリル、ジメチルフェニルシリル、メチルジフェニルシリル、トリトリルシリル、トリナフチルシリルなどのトリ炭化水素置換シリル；トリメチルシリルエーテルなどの炭化水素置換シリルのシリルエーテル；トリメチルシリルメチルなどのケイ素置換アルキル基；トリメチルシリルフェニルなどのケイ素置換アリール基などが挙げられる。

【0026】これらのうち、ハロゲン原子、炭素原子数が1～20の炭化水素基またはスルフォネート基が好ましい。 Y は周期表第15または16族の原子を示し、具体的

には窒素原子、リン原子、ヒ素原子、アンチモン原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子、テルル原子などが挙げられ、好ましくは窒素原子、酸素原子または硫黄原子である。本発明では、前記式(1)で表されるイミン化合物のうち、前記一般式(1)で表される遷移金属イミン化合物が下記一般式(1-a)で表される遷移金属イミン化合物である方が好ましい。

【0027】

【化6】



(1-a)

【0028】式中、Mは周期表第8～11族の遷移金属原子を示し、鉄、ルテニウム、オスニウム、コバルト、ロジウム、イリジウムなどの周期表第8、9族の遷移金属原子であることが好ましく、特に鉄、コバルトが好ましい。R⁷～R¹⁰は、互いに同一でも異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子、炭化水素基、ハロゲン化炭化水素基、ヘテロ環式化合物残基、炭化水素置換シリル基、炭化水素置換シロキシ基、アルコキシ基、チオアルコキシ基、アリーロキシ基、チオアリーロキシ基、アシル基、エステル基、チオエステル基、アミド基、イミド基、アミノ基、イミノ基、スルホンエステル基、スルホンアミド基、シアノ基、ニトロ基、カルボキシル基、スルホニル基、メルカプト基またはヒドロキシ基などを示す。ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。炭化水素基として具体的には、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、イソブチル、sec-ブチル、tert-ブチル、ペンチル、ヘキシルなどの炭素原子数が1～20の直鎖もしくは分岐状のアルカン；ビニル、アリル、イソプロペニルなどの炭素原子数が2～20の直鎖もしくは分岐状のアルケン；プロパルギルなど炭素原子数が2～20の直鎖もしくは分岐状のアルキン；シクロプロパニル、シクロブタニル、シクロペンタニル、シクロヘキシル、アダマンチルなどの炭素原子数が3から20の環状炭化水素；フェニル、ナフチル、シクロペンタジエニル、インデニル基などの炭素原子数が6～20のアリール基；また、これらに前記炭素原子数が1～20のアルキル基、炭素原子数が6～20のアリール基、アルコキシ基、アリーロキシ基などの置換基が1～5個置換した置換アリール基などでも良い。ハロゲン化炭化水素基としては、前記炭化水素基にハロゲンが置換した基が挙げられる。

【0029】ヘテロ環化合物としては、ビリジン、ピリミジン、キノリン等の含窒素芳香環、フラン、ピラン等の含酸素芳香環、チオフェン等の含硫黄芳香環などがあり、またこれらのヘテロ元素を含む置換基を有しても良

い。炭化水素置換シリル基として具体的には、メチルシリル、ジメチルシリル、トリメチルシリル、エチルシリル、ジエチルシリル、トリエチルシリル、ジフェニルメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。

【0030】炭化水素置換シロキシ基として具体的には、トリメチルシロキシなどが挙げられる。アルコキシ基として具体的には、メトキシ、エトキシ、n-プロポキシ、イソプロポキシ、n-ブトキシ、イソブトキシ、tert-ブトキシなどが挙げられる。チオアルコキシ基として具体的には、チオメチル、チオエチル等が挙げられる。

【0031】アリーロキシ基として具体的には、フェノキシ、2,6-ジメチルフェノキシ、2,4,6-トリメチルフェノキシなどが挙げられる。チオアリーロキシ基として具体的には、チオフェニル、メチルチオフェニル、チオナフチル等が挙げられる。アシル基として具体的には、ホルミル基、アシル基、ベンゾイル基、p-クロロベンゾイル基、p-メトキシベンゾイル基などが挙げられる。

【0032】エステル基として具体的には、アセチルオキシ、ベンゾイルオキシ、メトキシカルボニル、フェノキシカルボニル、p-クロロフェノキシカルボニルなどが挙げられる。チオエステル基として具体的には、チオアセチル、チオベンゾイル、チオメトキシカルボニル、チオフェノキシカルボニル、などが挙げられる。

【0033】アミド基として具体的には、アセトアミド、N-メチルアセトアミド、N-メチルベンズアミドなどが挙げられる。イミド基として具体的には、アセトイミド、ベンズイミドなどが挙げられる。アミノ基として具体的には、ジメチルアミノ、エチルメチルアミノ、ジフェニルアミノなどが挙げられる。

【0034】イミノ基として具体的には、メチルイミノ、エチルイミノ、プロピルイミノ、ブチルイミノ、フェニルイミノなどが挙げられる。スルホンエステル基として具体的には、スルホン酸メチル、スルホン酸エチル、スルホン酸フェニルなどが挙げられる。スルホンアミド基として具体的には、フェニルスルホンアミド、N-メチルスルホンアミド、N-メチル-p-トルエンスルホンアミドなどが挙げられる。R¹¹は、互いに同一でも異なってもよく、ハロゲン原子、炭化水素基、ハロゲン化炭化水素基、ヘテロ環式化合物残基、炭化水素置換シリル基、炭化水素置換シロキシ基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリーロキシ基、アリールチオ基、アシル基、エステル基、チオエステル基、アミド基、イミド基、アミノ基、イミノ基、スルホンエステル基、スルホンアミド基、シアノ基、ニトロ基、カルボキシル基、スルホニル基、メルカプト基またはヒドロキシ基などを示す。

【0035】ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。炭化水素基として具体的には、前述R⁷～R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブ

チル、イソブチル、sec-ブチル、tert-ブチル、ペンチル、ヘキシルなどの炭素原子数が1~20の直鎖もしくは分岐状のアルカン；ビニル、アリル、イソプロペニルなどの炭素原子数が2~20の直鎖もしくは分岐状のアルケン；プロパルギルなど炭素原子数が2~20の直鎖もしくは分岐状のアルキン；シクロプロパニル、シクロブタニル、シクロペンタニル、シクロヘキシル、アダマンチルなどの炭素原子数が3から20の環状炭化水素；フェニル、ナフチル、シクロペンタジエニル、インデニル基などの炭素原子数が6~20のアリール基；また、これらに前記炭素原子数が1~20のアルキル基、炭素原子数が6~20のアリール基、アルコキシ基、アリーロキシ基などの置換基が1~5個置換した置換アリール基などでも良い。ハロゲン化炭化水素基としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、前記炭化水素基にハロゲンが置換した基が挙げられる。

【0036】ヘテロ環化合物としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、ピリジン、ヒリミジン、キノリン等の含窒素芳香環、フラン、ヒラン等の含酸素芳香環、チオフエン等の含硫黄芳香環などがあり、またこれらのヘテロ元素を含む置換基を有しても良い。炭化水素置換シリル基としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、メチルシリル、ジメチルシリル、トリメチルシリル、エチルシリル、ジエチルシリル、トリエチルシリル、ジフェニルメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。

【0037】炭化水素置換シロキシ基としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、トリメチルシロキシなどが挙げられる。アルコキシ基としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、メトキシ、エトキシ、n-プロポキシ、イソプロポキシ、n-ブトキシ、イソブトキシ、tert-ブトキシなどが挙げられる。

【0038】チオアルコキシ基としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、チオメチル、チオエチル等が挙げられる。アリーロキシ基としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、フェノキシ、2,6-ジメチルフェノキシ、2,4,6-トリメチルフェノキシなどが挙げられる。

【0039】チオアリーロキシ基としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、チオフェニル、メチルチオフェニル、チオナフチル等が挙げられる。アシル基としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、ホルミル基、アシル基、ベンゾイル基、p-クロロベンゾイル基、p-メトキシベンゾイル基などが挙げられる。

【0040】エステル基としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、アセチルオキ

シ、ベンゾイルオキシ、メトキシカルボニル、フェノキシカルボニル、p-クロロフェノキシカルボニルなどが挙げられる。チオエステル基としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、チオアセチル、チオベンゾイル、チオメトキシカルボニル、チオフェノキシカルボニルなどが挙げられる。

【0041】アミド基としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、アセトアミド、N-メチルアセトアミド、N-メチルベンズアミドなどが挙げられる。イミド基としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、アセトイミド、ベンズイミドなどが挙げられる。

【0042】アミノ基としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、ジメチルアミノ、エチルメチルアミノ、ジフェニルアミノなどが挙げられる。イミノ基としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、メチルイミノ、エチルイミノ、プロピルイミノ、ブチルイミノ、フェニルイミノなどが挙げられる。

【0043】スルホンエステル基としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、スルホン酸メチル、スルホン酸エチル、スルホン酸フェニルなどが挙げられる。スルホンアミド基としては、具体的には、前述R⁷~R¹⁰と同様の基を示す。より具体的には、フェニルスルホンアミド、N-メチルスルホンアミド、N-メチル-p-トルエンスルホンアミドなどが挙げられる。またR⁷とR⁹、R⁸とR¹⁰、R⁸とR¹¹、R⁹とR¹⁰の各々が互いに連結して芳香族環、脂肪族環や窒素原子や硫黄原子、酸素原子などの異原子を含む炭化水素環を形成していてもよく、これらの環はさらに置換基を有してもよい。R¹²~R¹⁶は、互いに同一でも異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子、炭化水素基、ハロゲン化炭化水素基、ヘテロ環式化合物残基、炭化水素置換シリル基、炭化水素置換シロキシ基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリーロキシ基、アリールチオ基、アシル基、エステル基、チオエステル基、アミド基、イミド基、アミノ基、イミノ基、スルホンエステル基、スルホンアミド基、シアノ基、ニトロ基、カルボキシ基、スルホニル基、メルカプト基またはヒドロキシ基などを示す。ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。炭化水素基としては、具体的には、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、イソブチル、sec-ブチル、tert-ブチル、ペンチル、ヘキシルなどの炭素原子数が1~20の直鎖もしくは分岐状のアルカン；ビニル、アリル、イソプロペニルなどの炭素原子数が2~20の直鎖もしくは分岐状のアルケン；プロパルギルなど炭素原子数が2~20の直鎖もしくは分岐状のアルキン；シクロプロパニル、シクロブタニル、シクロペンタニル、シクロヘキシル、アダマンチルなどの炭素原子数が3から20の環状炭化水素；フェニ

ル、ナフチル、シクロペンタジエニル、インデニル基などの炭素原子数が6～20のアリール基；また、これらに前記炭素原子数が1～20のアルキル基、炭素原子数が6～20のアリール基、アルコキシ基、アリーロキシ基などの置換基が1～5個置換した置換アリール基などでも良い。ハロゲン化炭化水素基としては、前記炭化水素基にハロゲンが置換した基が挙げられる。

【0044】ヘテロ環化合物としては、ピリジン、ピリミジン、キノリン等の含窒素芳香環、フラン、ピラン等の含酸素芳香環、チオフェン等の含硫黄芳香環などがあり、またこれらのヘテロ元素を含む置換基を有しても良い。炭化水素置換シリル基として具体的には、メチルシリル、ジメチルシリル、トリメチルシリル、エチルシリル、ジエチルシリル、トリエチルシリル、ジフェニルメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。

【0045】炭化水素置換シロキシ基として具体的には、トリメチルシロキシなどが挙げられる。アルコキシ基として具体的には、メトキシ、エトキシ、*n*-プロポキシ、イソプロポキシ、*n*-ブトキシ、イソブトキシ、*tert*-ブトキシなどが挙げられる。チオアルコキシ基として具体的には、チオメチル、チオエチル等が挙げられる。

【0046】アリーロキシ基として具体的には、フェノキシ、2,6-ジメチルフェノキシ、2,4,6-トリメチルフェノキシなどが挙げられる。チオアリーロキシ基として具体的には、チオフェニル、メチルチオフェニル、チオナフチル等が挙げられる。アシル基として具体的には、ホルミル基、アシル基、ベンゾイル基、*p*-クロロベンゾイル基、*p*-メトキシベンゾイル基などが挙げられる。

【0047】エステル基として具体的には、アセチルオキシ、ベンゾイルオキシ、メトキシカルボニル、フェノキシカルボニル、*p*-クロロフェノキシカルボニルなどが挙げられる。チオエステル基として具体的には、チオアセチル、チオベンゾイル、チオメトキシカルボニル、チオフェノキシカルボニル、などが挙げられる。

【0048】アミド基として具体的には、アセトアミド、*N*-メチルアセトアミド、*N*-メチルベンズアミドなどが挙げられる。イミド基として具体的には、アセトイミド、ベンズイミドなどが挙げられる。アミノ基として具体的には、ジメチルアミノ、エチルメチルアミノ、ジフェニルアミノなどが挙げられる。

【0049】イミノ基として具体的には、メチルイミノ、エチルイミノ、プロピルイミノ、ブチルイミノ、フェニルイミノなどが挙げられる。スルホンエステル基として具体的には、スルホン酸メチル、スルホン酸エチル、スルホン酸フェニルなどが挙げられる。スルホンアミド基として具体的には、フェニルスルホンアミド、*N*-メチルスルホンアミド、*N*-メチル-*p*-トルエンスルホンアミドなどが挙げられる。 $R^{12} \sim R^{16}$ のうち少なくとも1つは水素原子以外の基であり、また $R^{12} \sim R^{16}$ で示される基のうちの2個以上の基が互いに連結して環を形成

していてもよく、好ましくは隣接する基が互いに連結して脂肪族環、芳香族環または、窒素原子などの異原子を含む炭化水素環を形成していてもよく、これらの環はさらに置換基を有してもよい。 n は、 M の価数を満たす数であり、具体的には1～8、好ましくは1～5、より好ましくは1～3の整数である。 X は、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数1～20の炭化水素基、炭素原子数1～20のハロゲン化炭化水素基、酸素含有基、イオウ含有基、ケイ素含有基を示し、 n が2以上の場合には、 X で示される複数の基は互いに同一でも異なってもよい。

【0050】ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。炭素原子数が1～20の炭化水素基としては、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アリールアルキル基、アリール基などが挙げられ、より具体的には、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ヘキシル、オクチル、ノニル、ドデシル、アイコシルなどのアルキル基；シクロペンチル、シクロヘキシル、ノルボルニル、アダマンチルなどのシクロアルキル基；ビニル、プロペニル、シクロヘキセニルなどのアルケニル基；ベンジル、フェニルエチル、フェニルプロピルなどのアリールアルキル基；フェニル、トリル、ジメチルフェニル、トリメチルフェニル、エチルフェニル、プロピルフェニル、ビフェニル、ナフチル、メチルナフチル、アントリル、フェナントリルなどのアリール基が挙げられる。

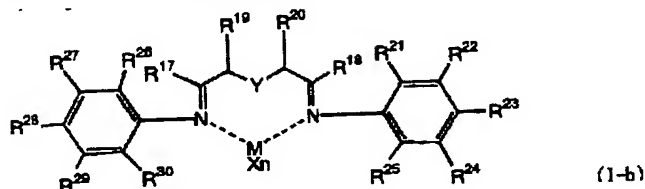
【0051】炭素原子数が1～20のハロゲン化炭化水素基としては、前記炭素原子数が1～20の炭化水素基にハロゲンが置換した基が挙げられる。酸素含有基としては、ヒドロキシ基；メトキシ、エトキシ、プロポキシ、ブトキシなどのアルコキシ基；フェノキシ、メチルフェノキシ、ジメチルフェノキシ、ナフトキシなどのアリーロキシ基；フェニルメトキシ、フェニルエトキシなどのアリールアルコキシ基などが挙げられる。

【0052】イオウ含有基としては、前記酸素含有基の酸素がイオウに置換した置換基、ならびにメチルスルフォネート、トリフルオロメタンスルフォネート、フェニルスルフォネート、ベンジルスルフォネート、*p*-トルエンスルフォネート、トリメチルベンゼンスルフォネート、トリイソブチルベンゼンスルフォネート、*p*-クロルベンゼンスルフォネート、ペンタフルオロベンゼンスルフォネートなどのスルフォネート基；メチルスルフィネート、フェニルスルフィネート、ベンジルスルフィネート、*p*-トルエンスルフィネート、トリメチルベンゼンスルフィネート、ペンタフルオロベンゼンスルフィネートなどのスルフィネート基が挙げられる。

【0053】ケイ素含有基としては、メチルシリル、フェニルシリルなどのモノ炭化水素置換シリル；ジメチルシリル、ジフェニルシリルなどのジ炭化水素置換シリル；トリメチルシリル、トリエチルシリル、トリプロピ

ルシリル、トリシクロヘキシルシリル、トリフェニルシリル、ジメチルフェニルシリル、メチルジフェニルシリル、トリトリルシリル、トリナフチルシリルなどのトリ炭化水素置換シリル；トリメチルシリルエーテルなどの炭化水素置換シリルのシリルエーテル；トリメチルシリルメチルなどのケイ素置換アルキル基；トリメチルシリルフェニルなどのケイ素置換アリール基などが挙げられる。

【0054】これらのうち、ハロゲン原子、炭素原子数が1～20の炭化水素基またはスルフォネート基が好ま



【0056】式中、Mは周期表第8～11族の遷移金属原子を示し、鉄、ルテニウム、オスニウム、コバルト、ロジウム、イリジウムなどの周期表第8、9族の遷移金属原子であることが好ましく、特に鉄、コバルトが好ましい。R¹⁷～R²⁰は、互いに同一でも異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子、炭化水素基、ハロゲン化炭化水素基、ヘテロ環式化合物残基、炭化水素置換シリル基、炭化水素置換シロキシ基、アルコキシ基、チオアルコキシ基、アリーロキシ基、チオアリーロキシ基、アシル基、エステル基、チオエステル基、アミド基、イミド基、アミノ基、イミノ基、スルホンエステル基、スルホンアミド基、シアノ基、ニトロ基、カルボキシル基、スルホニル基、メルカプト基またはヒドロキシ基などを示す。ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。炭化水素基として具体的には、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、イソブチル、sec-ブチル、tert-ブチル、ペンチル、ヘキシルなどの炭素原子数が1～20の直鎖もしくは分岐状のアルカン；ビニル、アリル、イソプロベニルなどの炭素原子数が2～20の直鎖もしくは分岐状のアルケン；プロパルギルなど炭素原子数が2～20の直鎖もしくは分岐状のアルキン；シクロプロパニル、シクロブタニル、シクロペンタニル、シクロヘキシル、アダマンチルなどの炭素原子数が3から20の環状炭化水素；フェニル、ナフチル、シクロペンタジエニル、インデニル基などの炭素原子数が6～20のアリール基；また、これらに前記炭素原子数が1～20のアルキル基、炭素原子数が6～20のアリール基、アルコキシ基、アリーロキシ基などの置換基が1～5個置換した置換アリール基などでも良い。ハロゲン化炭化水素基としては、前記炭化水素基にハロゲンが置換した基が挙げられる。

【0057】ヘテロ環化合物としては、ピリジン、ピリミジン、キノリン等の含窒素芳香環、フラン、ピラン等の含酸素芳香環、チオフェン等の含硫黄芳香環などがあ

しい。Yは周期表第15または16族の原子を示し、具体的には窒素原子、リン原子、ヒ素原子、アンチモン原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子、テルル原子などが挙げられ、好ましくは窒素原子、酸素原子または硫黄原子である。本発明では、さらに前記式(I)で表されるイミン化合物のうち、前記一般式(I)で表される遷移金属イミン化合物が下記一般式(I-b)で表される遷移金属イミン化合物である方がより好ましい。

【0055】

【化7】

り、またこれらのヘテロ元素を含む置換基を有しても良い。炭化水素置換シリル基として具体的には、メチルシリル、ジメチルシリル、トリメチルシリル、エチルシリル、ジエチルシリル、トリエチルシリル、ジフェニルメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。

【0058】炭化水素置換シロキシ基として具体的には、トリメチルシロキシなどが挙げられる。アルコキシ基として具体的には、メトキシ、エトキシ、n-プロポキシ、イソプロポキシ、n-ブトキシ、イソブトキシ、tert-ブトキシなどが挙げられる。チオアルコキシ基として具体的には、チオメチル、チオエチル等が挙げられる。

【0059】アリーロキシ基として具体的には、フェノキシ、2,6-ジメチルフェノキシ、2,4,6-トリメチルフェノキシなどが挙げられる。チオアリーロキシ基として具体的には、チオフェニル、メチルチオフェニル、チオナフチル等が挙げられる。アシル基として具体的には、ホルミル基、アシル基、ベンゾイル基、p-クロロベンゾイル基、p-メトキシベンゾイル基などが挙げられる。

【0060】エステル基として具体的には、アセチルオキシ、ベンゾイルオキシ、メトキシカルボニル、フェノキシカルボニル、p-クロロフェノキシカルボニルなどが挙げられる。チオエステル基として具体的には、チオアセチル、チオベンゾイル、チオメトキシカルボニル、チオフェノキシカルボニル、などが挙げられる。

【0061】アミド基として具体的には、アセトアミド、N-メチルアセトアミド、N-メチルベンズアミドなどが挙げられる。イミド基として具体的には、アセトイミド、ベンズイミドなどが挙げられる。アミノ基として具体的には、ジメチルアミノ、エチルメチルアミノ、ジフェニルアミノなどが挙げられる。

【0062】イミノ基として具体的には、メチルイミノ、エチルイミノ、プロピルイミノ、ブチルイミノ、フェニルイミノなどが挙げられる。スルホンエステル基として具体的には、スルホン酸メチル、スルホン酸エチ

ル、スルホン酸フェニルなどが挙げられる。スルホンアミド基として具体的には、フェニルスルホンアミド、N-メチルスルホンアミド、N-メチル-p-トルエンスルホンアミドなどが挙げられる。またR¹⁷とR¹⁸、R¹⁸とR²⁰、R¹⁹とR²⁰の各々が互いに連結して芳香族環、脂肪族環や窒素原子や硫黄原子、酸素原子などの異原子を含む炭化水素環を形成していてもよく、これらの環はさらに置換基を有してもよい。R²¹～R³⁰は、互いに同一でも異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子、炭化水素基、ハロゲン化炭化水素基、ヘテロ環式化合物残基、炭化水素置換シリル基、炭化水素置換シロキシ基、アルコキシ基、チオアルコキシ基、アリーロキシ基、チオアリーロキシ基、アシル基、エステル基、チオエステル基、アミド基、イミド基、アミノ基、イミノ基、スルホンエステル基、スルホンアミド基、シアノ基、ニトロ基、カルボキシ基、スルホニル基、メルカプト基またはヒドロキシ基などを示す。ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。炭化水素基として具体的には、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、イソブチル、sec-ブチル、tert-ブチル、ペンチル、ヘキシルなどの炭素原子数が1～20の直鎖もしくは分岐状のアルカン；ビニル、アリル、イソプロペニルなどの炭素原子数が2～20の直鎖もしくは分岐状のアルケン；プロパルギルなど炭素原子数が2～20の直鎖もしくは分岐状のアルキン；シクロプロパニル、シクロブタニル、シクロペンタニル、シクロヘキシル、アダマンチルなどの炭素原子数が3から20の環状炭化水素；フェニル、ナフチル、シクロペンタジエニル、インデニル基などの炭素原子数が6～20のアリール基；また、これらに前記炭素原子数が1～20のアルキル基、炭素原子数が6～20のアリール基、アルコキシ基、アリーロキシ基などの置換基が1～5個置換した置換アリール基などでも良い。ハロゲン化炭化水素基としては、前記炭化水素基にハロゲンが置換した基が挙げられる。

【0063】ヘテロ環化合物としては、ピリジン、ピリミジン、キノリン等の含窒素芳香環、フラン、ピラン等の含酸素芳香環、チオフェン等の含硫黄芳香環などがあり、またこれらのヘテロ元素を含む置換基を有しても良い。炭化水素置換シリル基として具体的には、メチルシリル、ジメチルシリル、トリメチルシリル、エチルシリル、ジエチルシリル、トリエチルシリル、ジフェニルメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。

【0064】炭化水素置換シロキシ基として具体的には、トリメチルシロキシなどが挙げられる。アルコキシ基として具体的には、メトキシ、エトキシ、n-プロポキシ、イソプロポキシ、n-ブトキシ、イソブトキシ、tert-ブトキシなどが挙げられる。チオアルコキシ基として具体的には、チオメチル、チオエチル等が挙げられる。

【0065】アリーロキシ基として具体的には、フェノ

キシ、2,6-ジメチルフェノキシ、2,4,6-トリメチルフェノキシなどが挙げられる。チオアリーロキシ基として具体的には、チオフェニル、メチルチオフェニル、チオナフチル等が挙げられる。アシル基として具体的には、ホルミル基、アシル基、ベンゾイル基、p-クロロベンゾイル基、p-メトキシベンゾイル基などが挙げられる。

【0066】エステル基として具体的には、アセチルオキシ、ベンゾイルオキシ、メトキシカルボニル、フェノキシカルボニル、p-クロロフェノキシカルボニルなどが挙げられる。チオエステル基として具体的には、チオアセチル、チオベンゾイル、チオメトキシカルボニル、チオフェノキシカルボニル、などが挙げられる。

【0067】アミド基として具体的には、アセトアミド、N-メチルアセトアミド、N-メチルベンズアミドなどが挙げられる。イミド基として具体的には、アセトイミド、ベンズイミドなどが挙げられる。アミノ基として具体的には、ジメチルアミノ、エチルメチルアミノ、ジフェニルアミノなどが挙げられる。

【0068】イミノ基として具体的には、メチルイミノ、エチルイミノ、プロピルイミノ、ブチルイミノ、フェニルイミノなどが挙げられる。スルホンエステル基として具体的には、スルホン酸メチル、スルホン酸エチル、スルホン酸フェニルなどが挙げられる。スルホンアミド基として具体的には、フェニルスルホンアミド、N-メチルスルホンアミド、N-メチル-p-トルエンスルホンアミドなどが挙げられる。R²¹～R²⁵のうち少なくとも1つは水素原子以外の基であり、かつR²⁶～R³⁰のうち少なくとも1つは水素原子以外の基であり、またR²¹～R²⁵で示される基のうちの2個以上の基が互いに連結して環を形成していてもよく、R²⁶～R³⁰で示される基のうちの2個以上の基が互いに連結して環を形成していてもよく、好ましくは隣接する基が互いに連結して脂肪族環、芳香族環または、窒素原子などの異原子を含む炭化水素環を形成していてもよく、これらの環はさらに置換基を有してもよい。nは、Mの価数を満たす数であり、具体的には1～8、好ましくは1～5、より好ましくは1～3の整数である。Xは、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数1～20の炭化水素基、炭素原子数1～20のハロゲン化炭化水素基、酸素含有基、イオウ含有基、ケイ素含有基を示し、nが2以上の場合には、Xで示される複数の基は互いに同一でも異なってもよい。

【0069】ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。炭素原子数が1～20の炭化水素基としては、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アリールアルキル基、アリール基などが挙げられ、より具体的には、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ヘキシル、オクチル、ノニル、ドデシル、アイコシルなどのアルキル基；シクロペンチル、シクロヘキシル、ノルボルニル、アダマンチルなどのシクロアルキル

基；ビニル、プロベニル、シクロヘキセニルなどのアルケニル基；ベンジル、フェニルエチル、フェニルプロピルなどのアリールアルキル基；フェニル、トリル、ジメチルフェニル、トリメチルフェニル、エチルフェニル、プロピルフェニル、ピフェニル、ナフチル、メチルナフチル、アントリル、フェナントリルなどのアリール基が挙げられる。

【0070】炭素原子数が1～20のハロゲン化炭化水素基としては、前記炭素原子数が1～20の炭化水素基にハロゲンが置換した基が挙げられる。酸素含有基としては、ヒドロキシ基；メトキシ、エトキシ、プロポキシ、ブトキシなどのアルコキシ基；フェノキシ、メチルフェノキシ、ジメチルフェノキシ、ナフトキシなどのアリーロキシ基；フェニルメトキシ、フェニルエトキシなどのアリールアルコキシ基などが挙げられる。

【0071】イオウ含有基としては、前記酸素含有基の酸素がイオウに置換した置換基、ならびにメチルスルフォネート、トリフルオロメタンスルフォネート、フェニルスルフォネート、ベンジルスルフォネート、p-トルエンスルフォネート、トリメチルベンゼンスルフォネート、トリイソブチルベンゼンスルフォネート、p-クロルベンゼンスルフォネート、ペンタフルオロベンゼンスルフォネートなどのスルフォネート基；メチルスルフィネート、フェニルスルフィネート、ベンジルスルフィネート、p-トルエンスルフィネート、トリメチルベンゼン

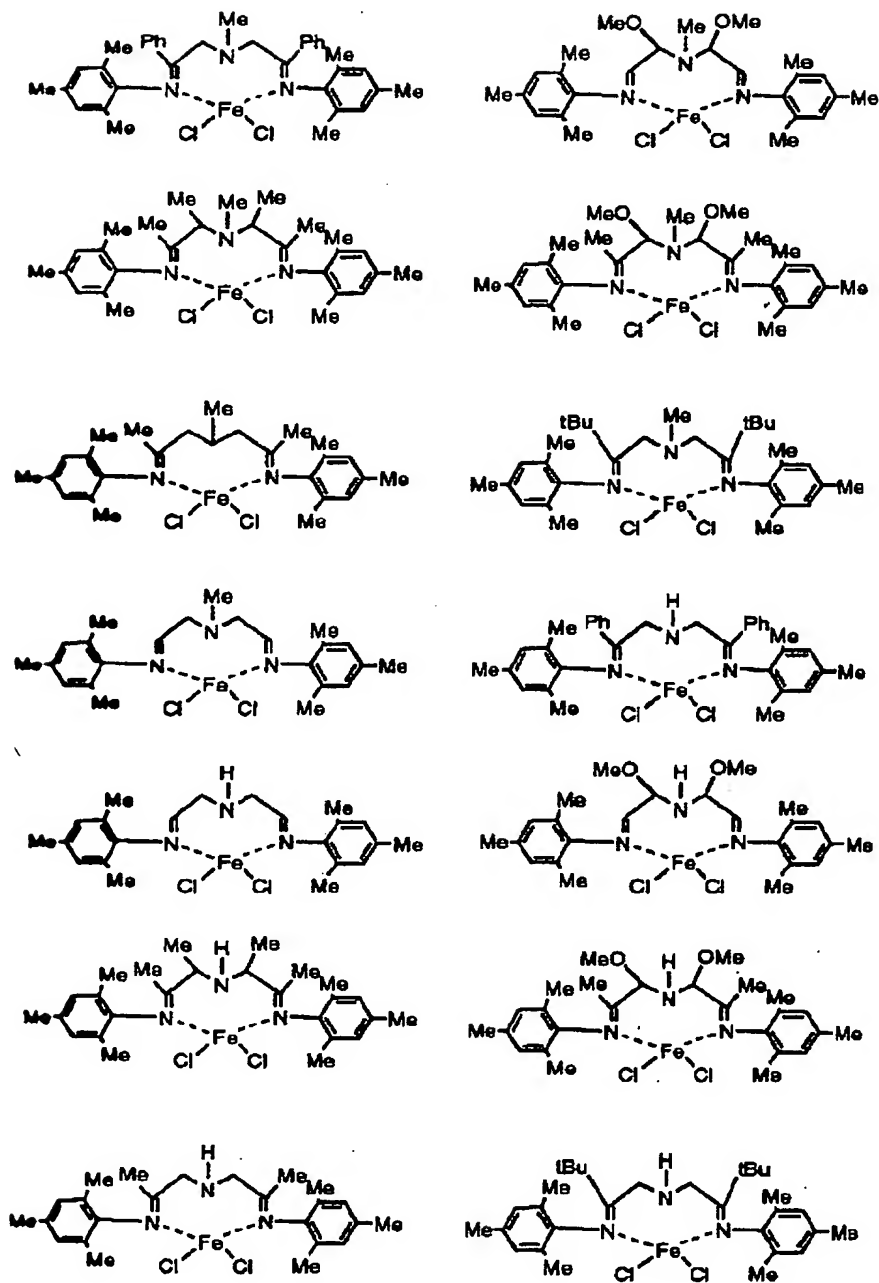
スルフィネート、ペンタフルオロベンゼンスルフィネートなどのスルフィネート基が挙げられる。

【0072】ケイ素含有基としては、メチルシリル、フェニルシリルなどのモノ炭化水素置換シリル；ジメチルシリル、ジフェニルシリルなどのジ炭化水素置換シリル；トリメチルシリル、トリエチルシリル、トリプロピルシリル、トリシクロヘキシルシリル、トリフェニルシリル、ジメチルフェニルシリル、メチルジフェニルシリル、トリトリルシリル、トリナフチルシリルなどのトリ炭化水素置換シリル；トリメチルシリルエーテルなどの炭化水素置換シリルのシリルエーテル；トリメチルシリルメチルなどのケイ素置換アルキル基；トリメチルシリルフェニルなどのケイ素置換アリール基などが挙げられる。

【0073】これらのうち、ハロゲン原子、炭素原子数が1～20の炭化水素基またはスルフォネート基が好ましい。Yは周期表第15または16族の原子を示し、具体的には窒素原子、リン原子、ヒ素原子、アンチモン原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子、テルル原子などが挙げられ、好ましくは窒素原子、酸素原子または硫黄原子である。以下に、上記一般式(I)、(I-a)、(I-b)で表される遷移金属イミン化合物の具体的な例を示すが、これらに限定されるものではない。

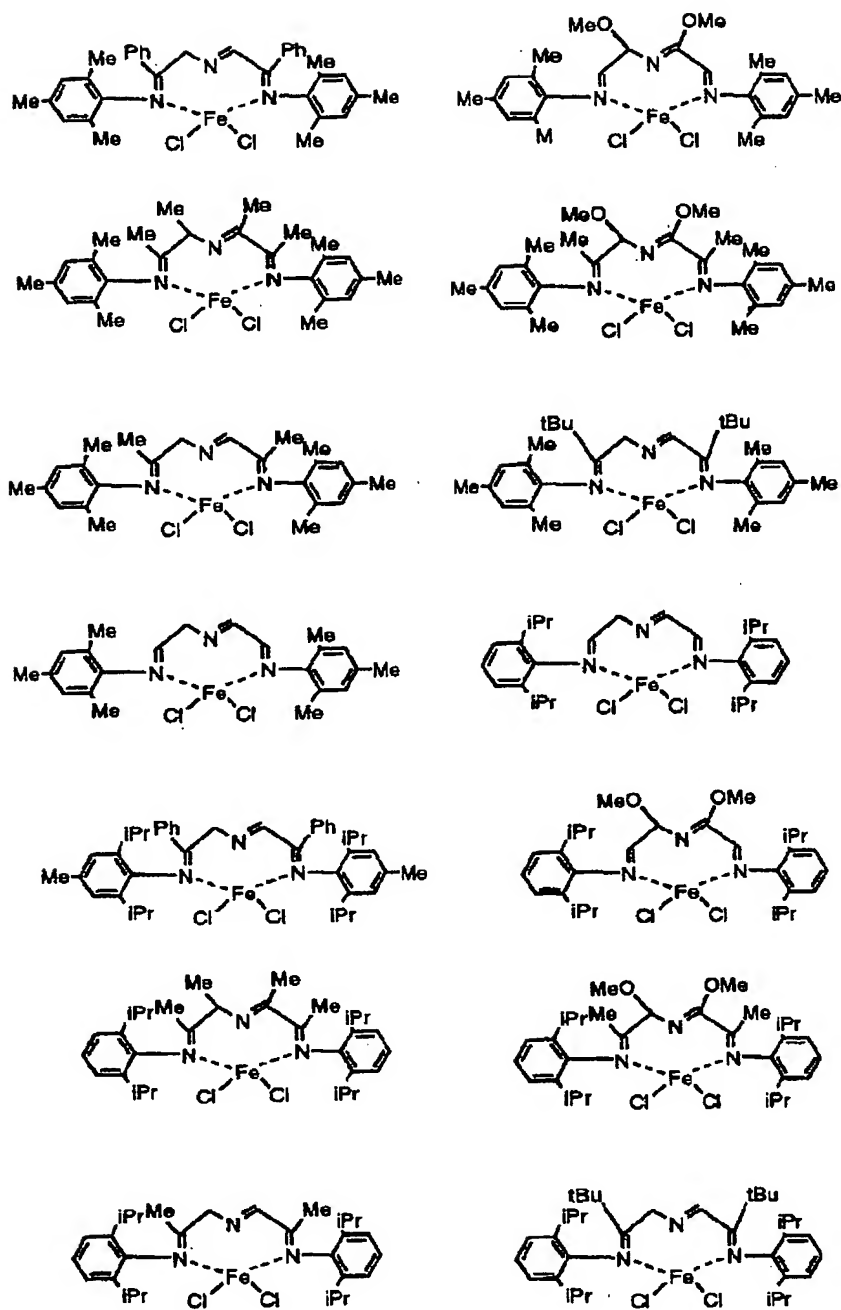
【0074】

【化8】



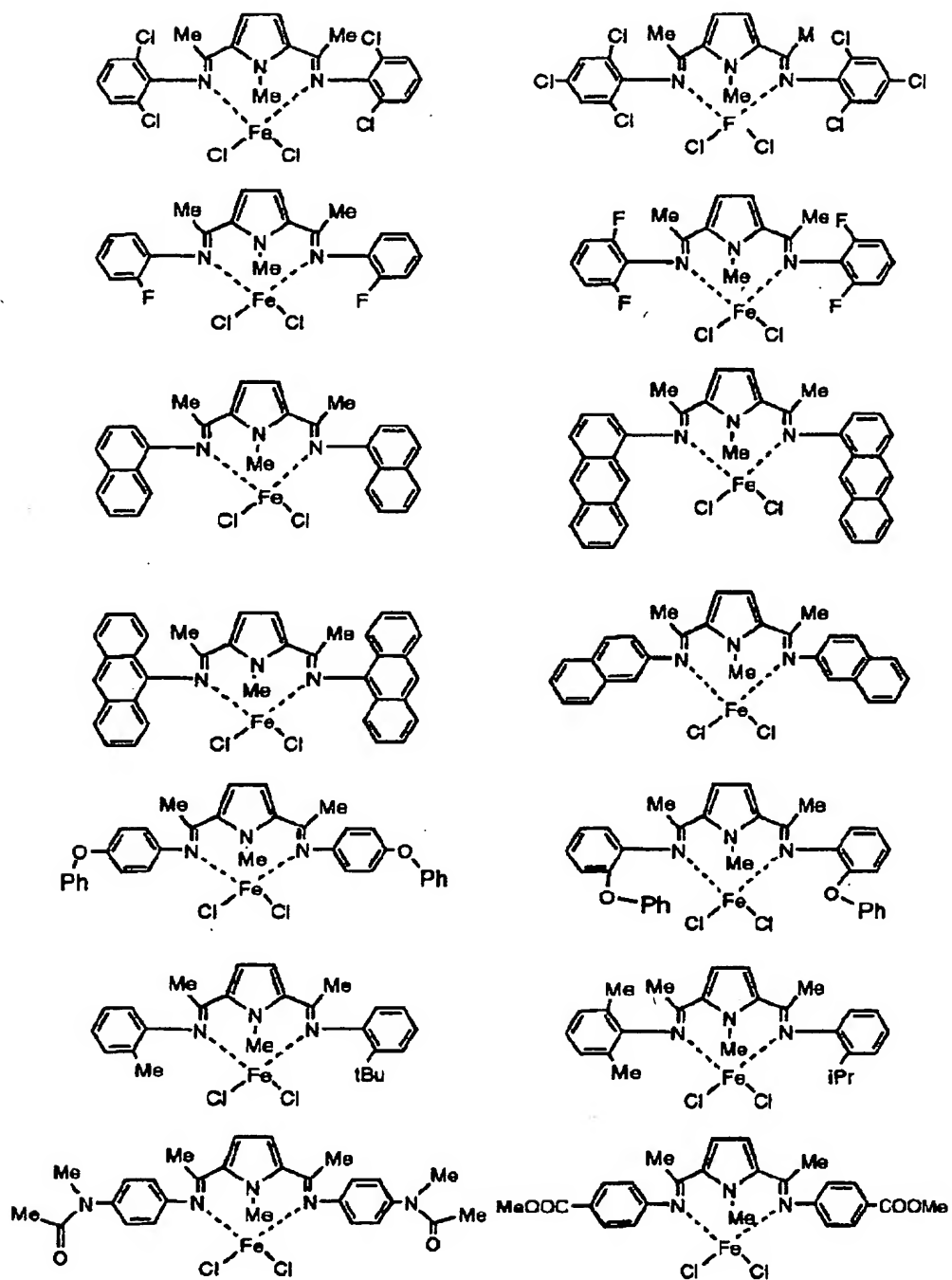
【0075】

【化9】



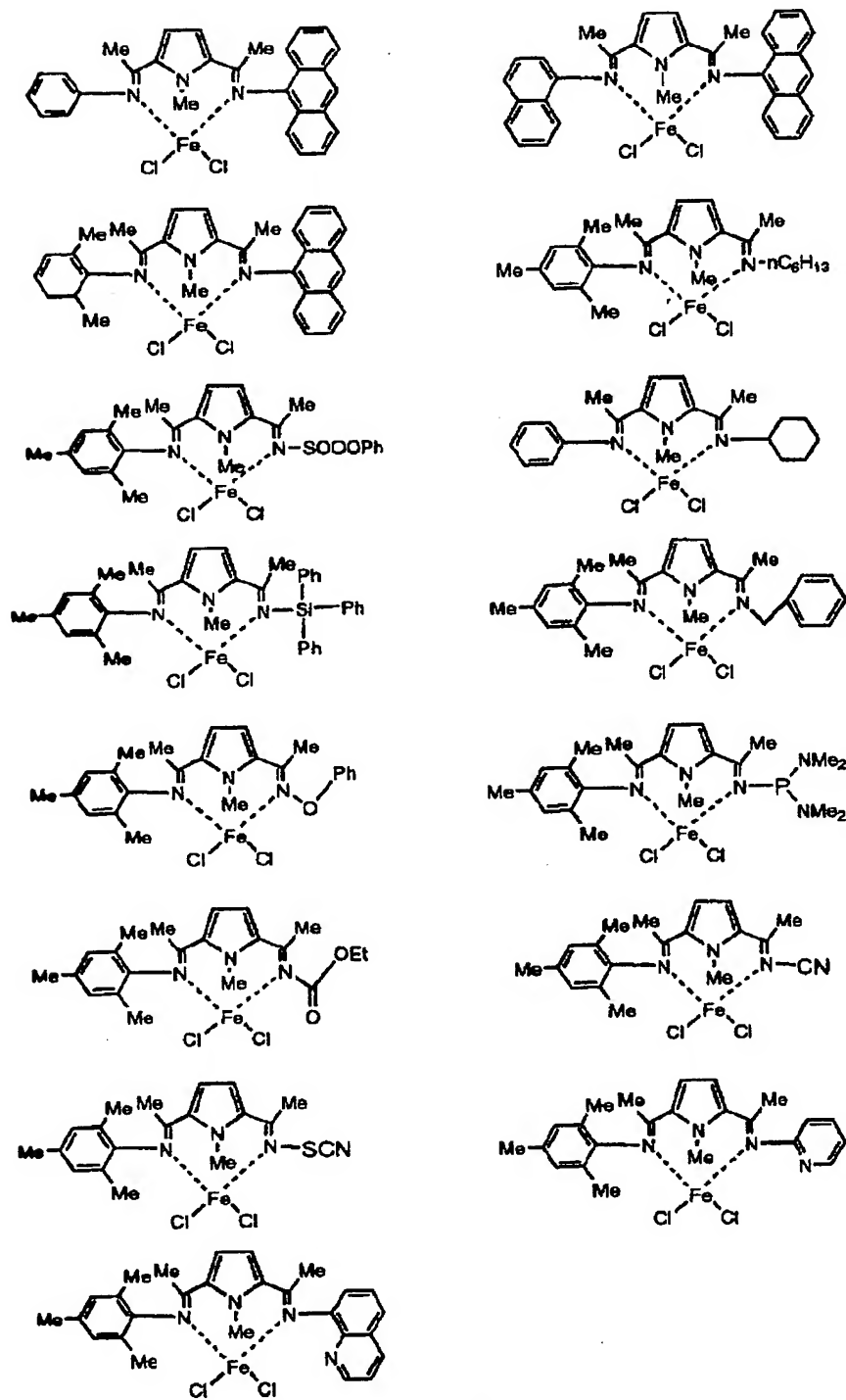
【0076】

【化10】



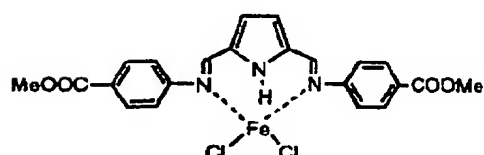
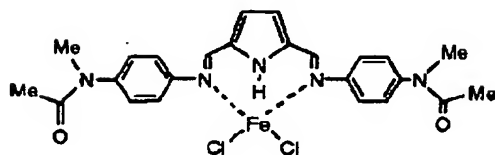
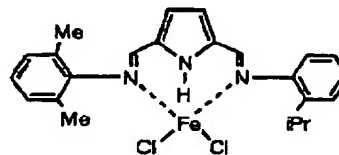
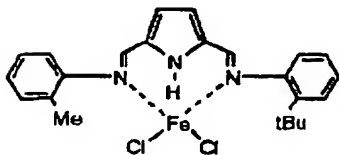
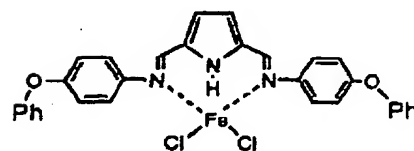
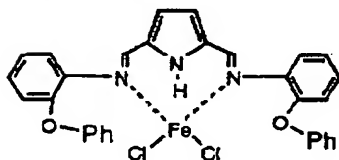
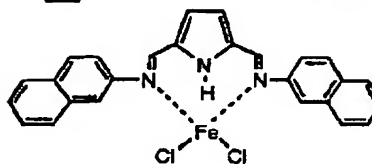
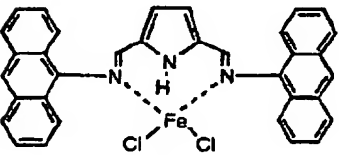
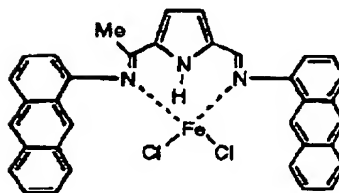
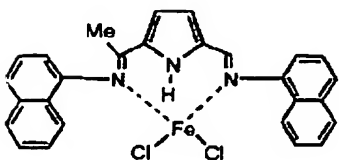
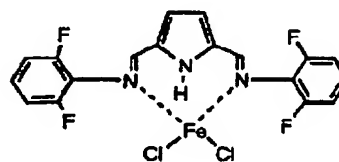
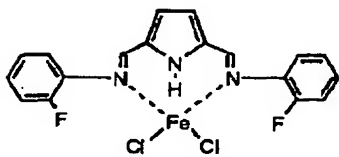
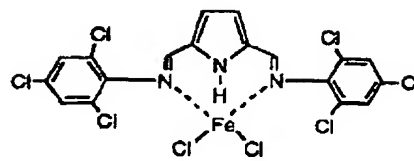
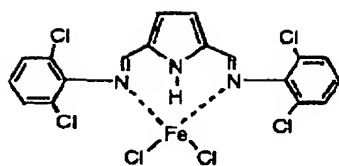
【0077】

【化 1 1】



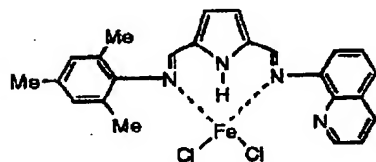
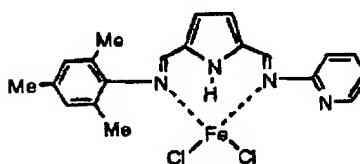
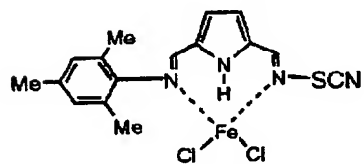
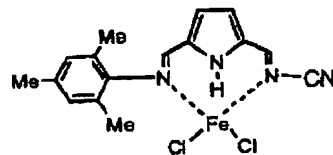
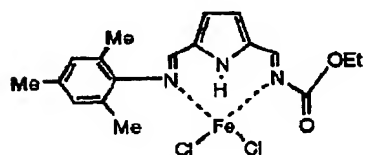
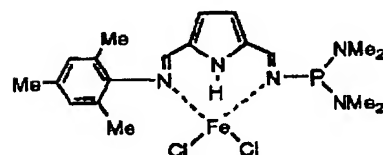
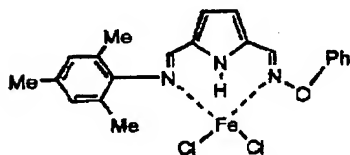
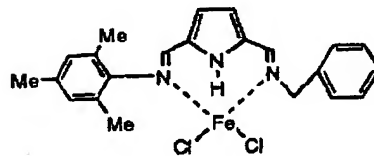
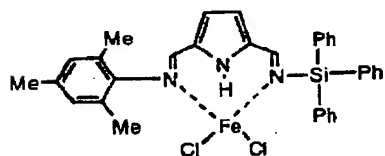
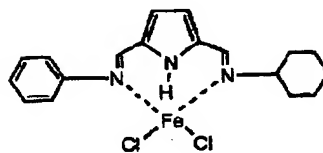
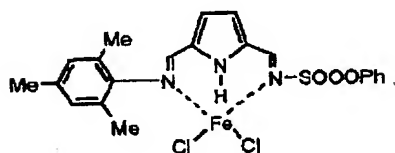
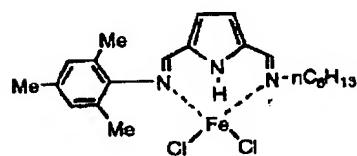
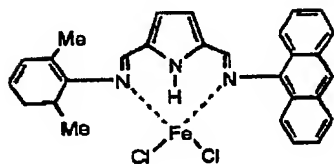
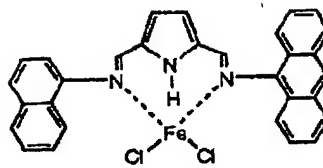
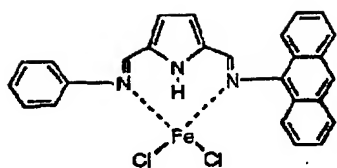
【0078】

【化12】



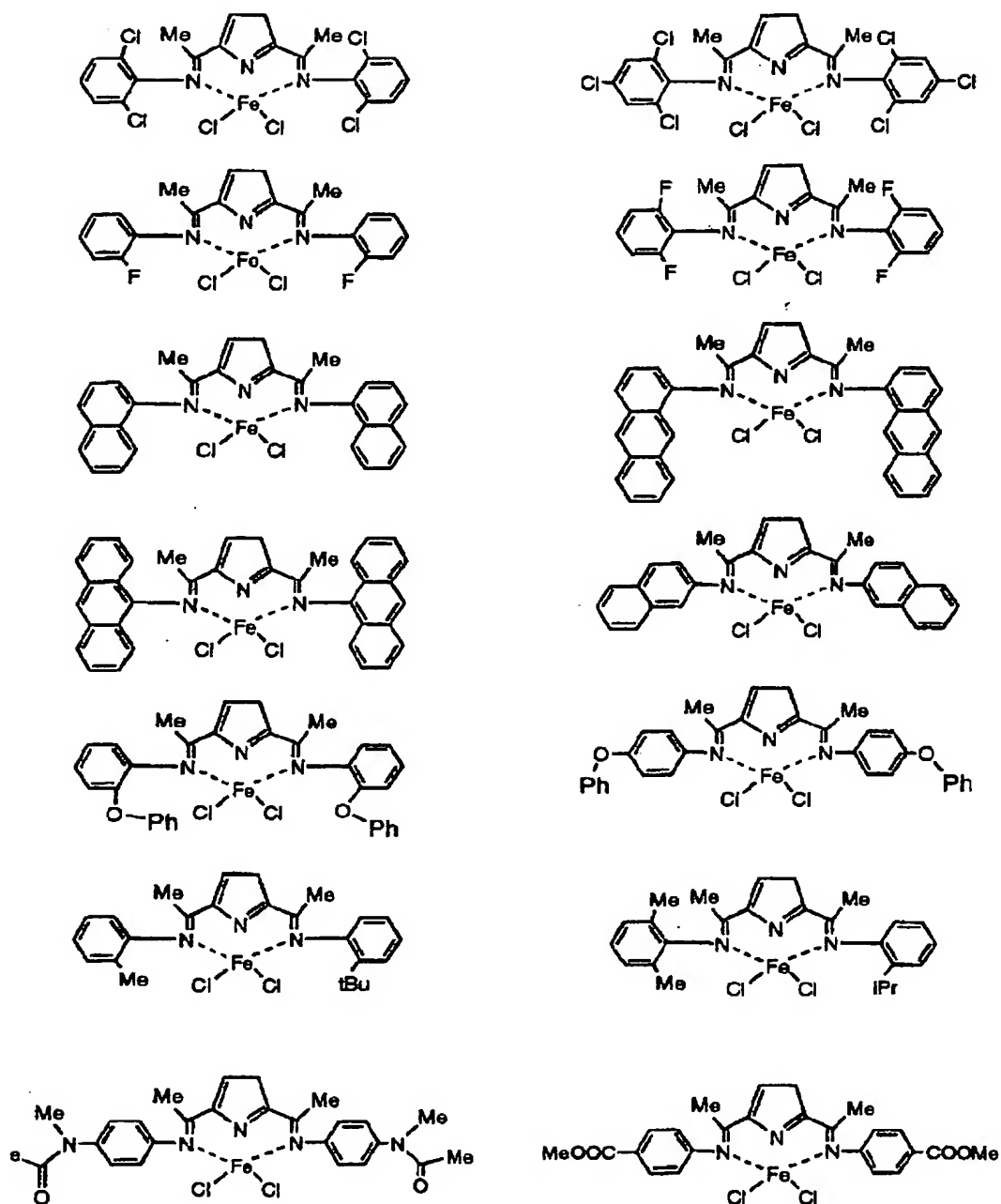
【0079】

【化13】



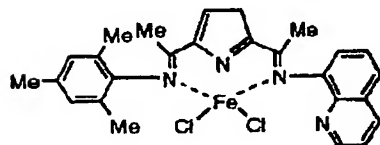
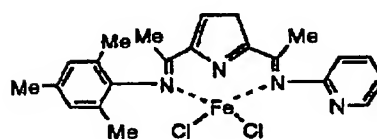
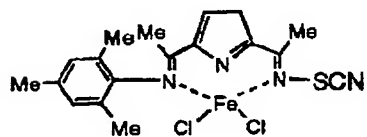
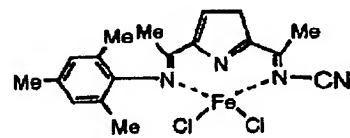
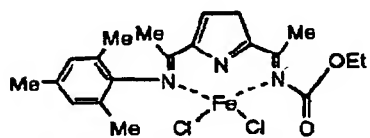
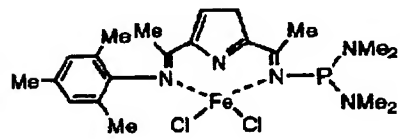
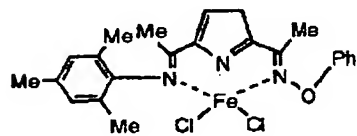
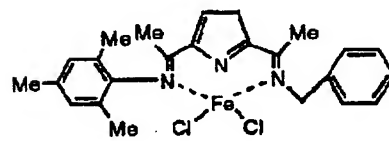
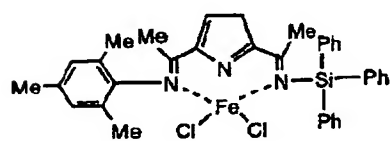
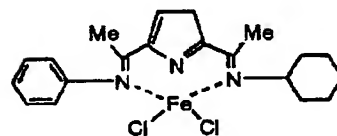
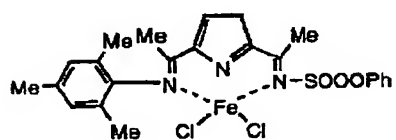
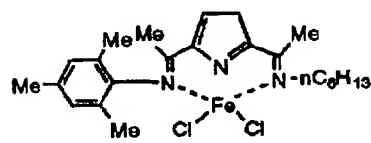
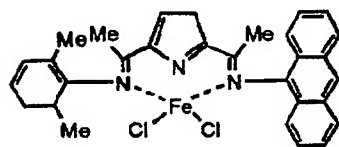
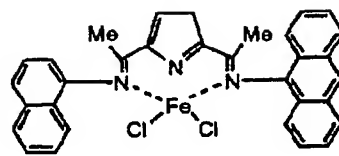
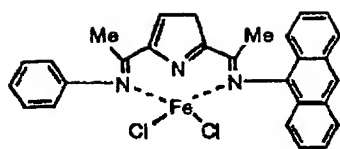
【0080】

【化14】



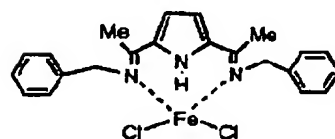
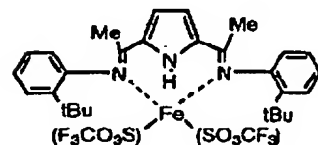
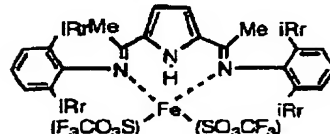
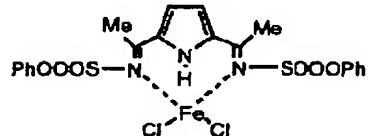
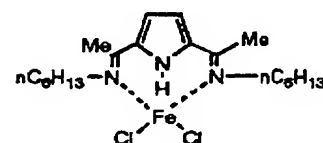
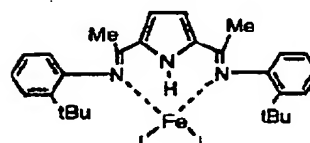
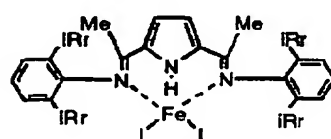
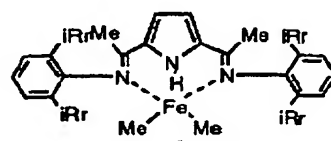
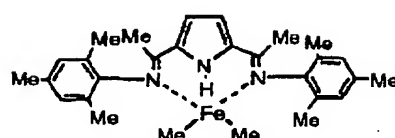
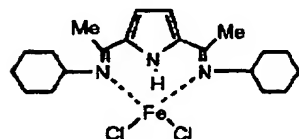
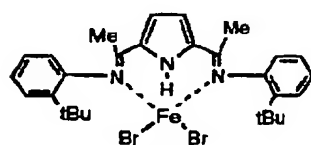
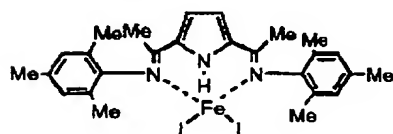
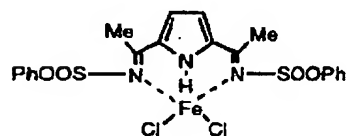
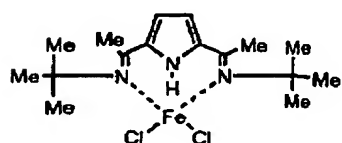
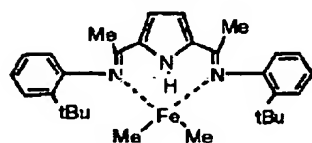
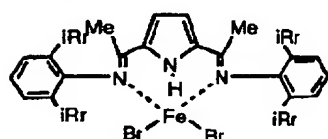
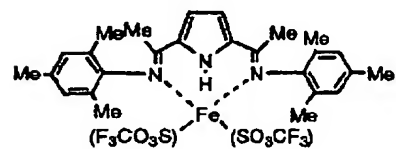
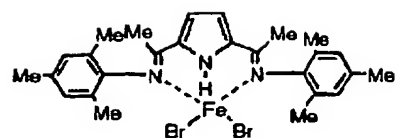
【0081】

【化15】



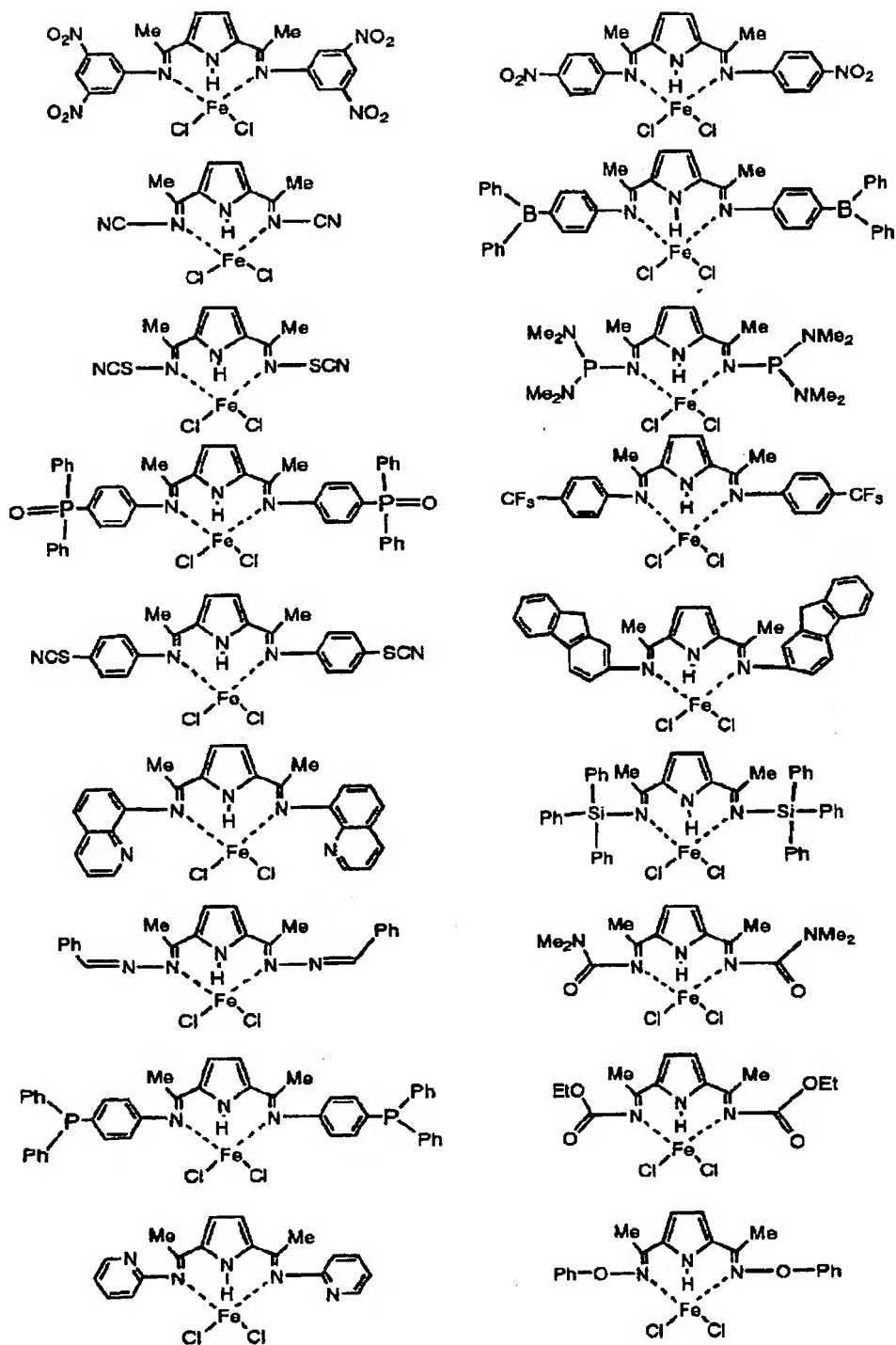
【0082】

【化16】



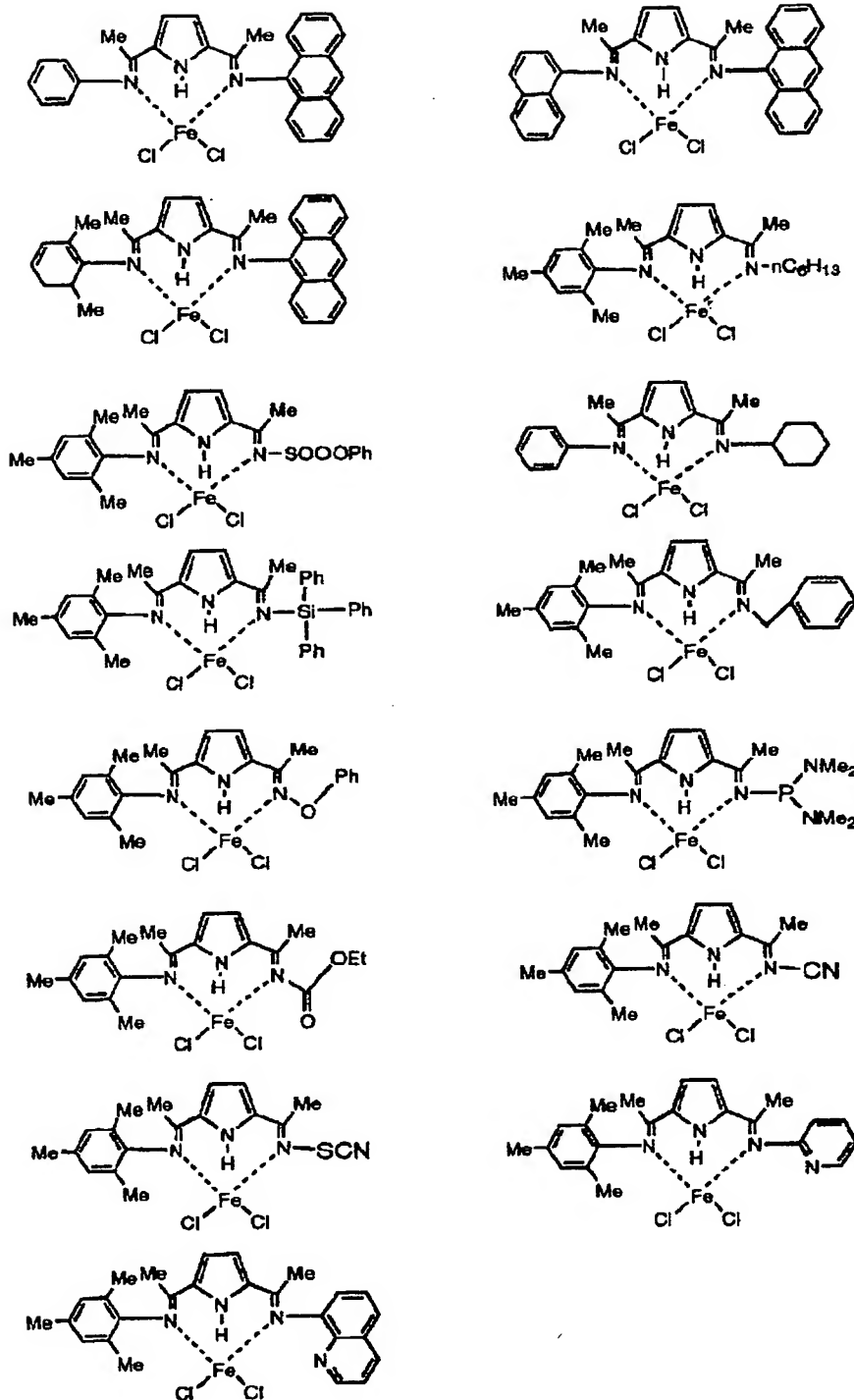
【0083】

【化17】



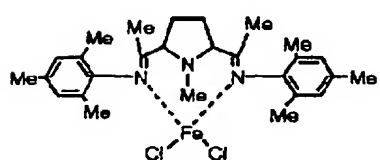
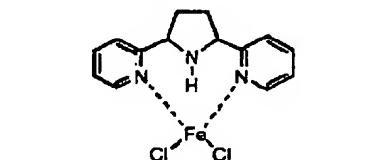
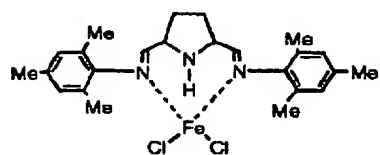
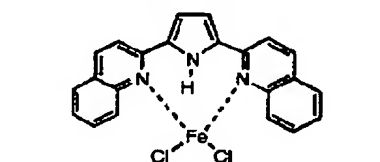
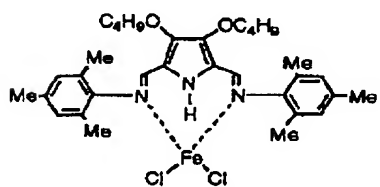
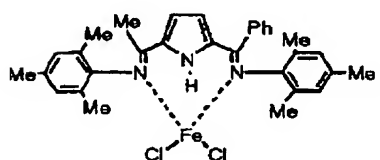
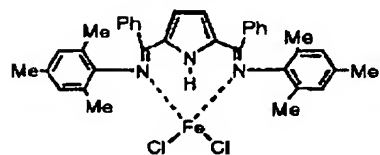
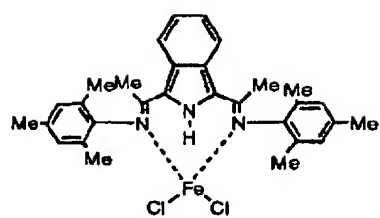
【0084】

【化18】

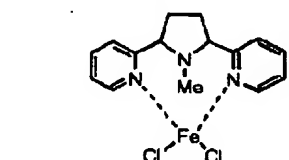
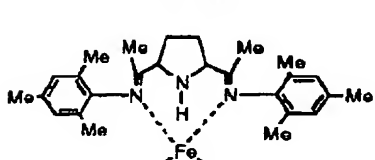
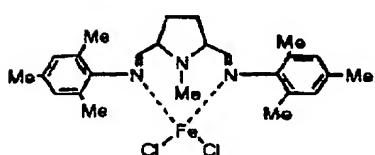
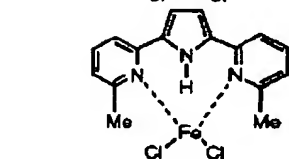
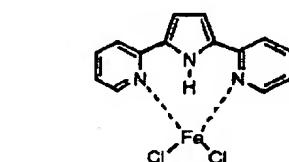
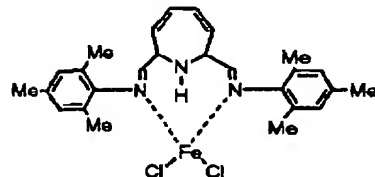
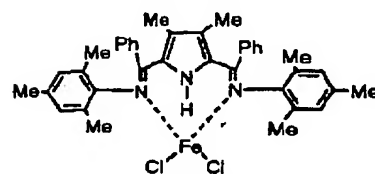
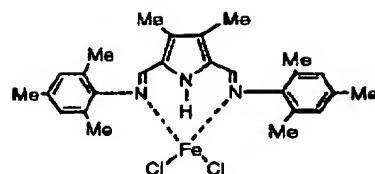


【0086】

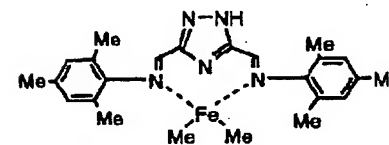
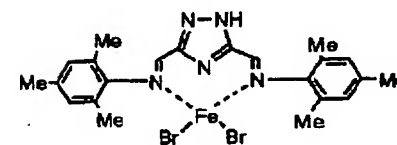
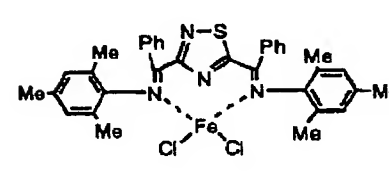
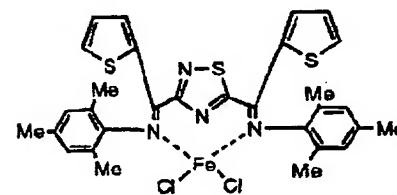
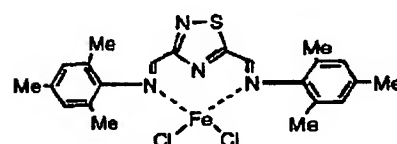
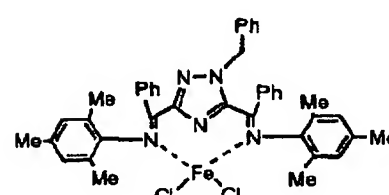
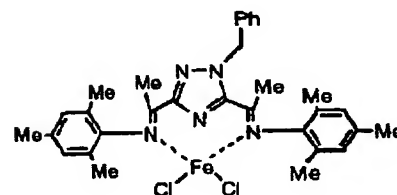
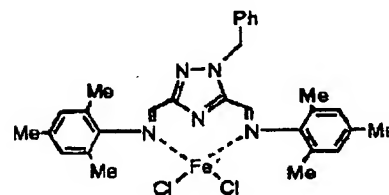
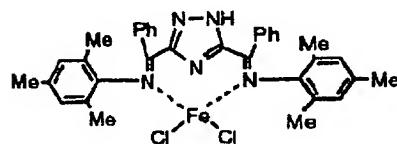
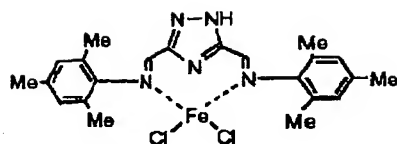
【化20】



【0087】

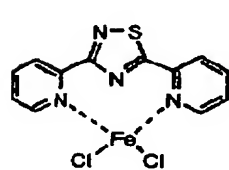
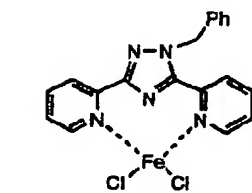
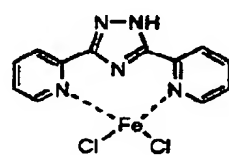
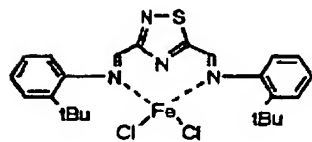
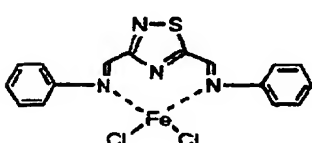
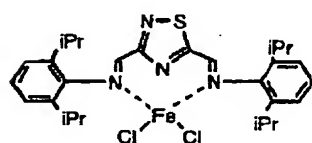
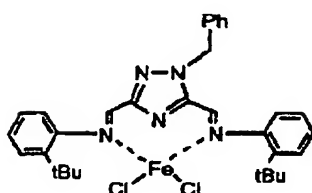
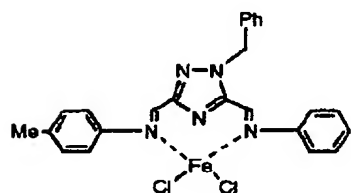
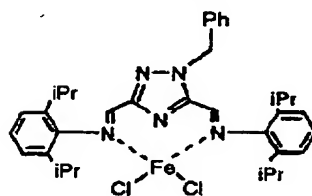
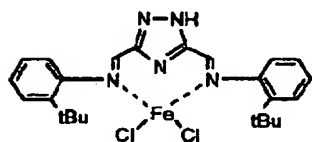
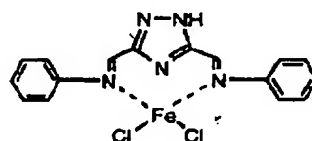
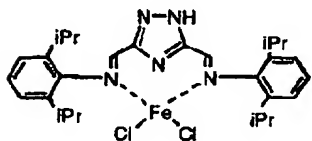
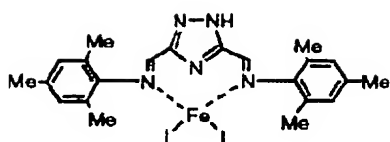


【化21】



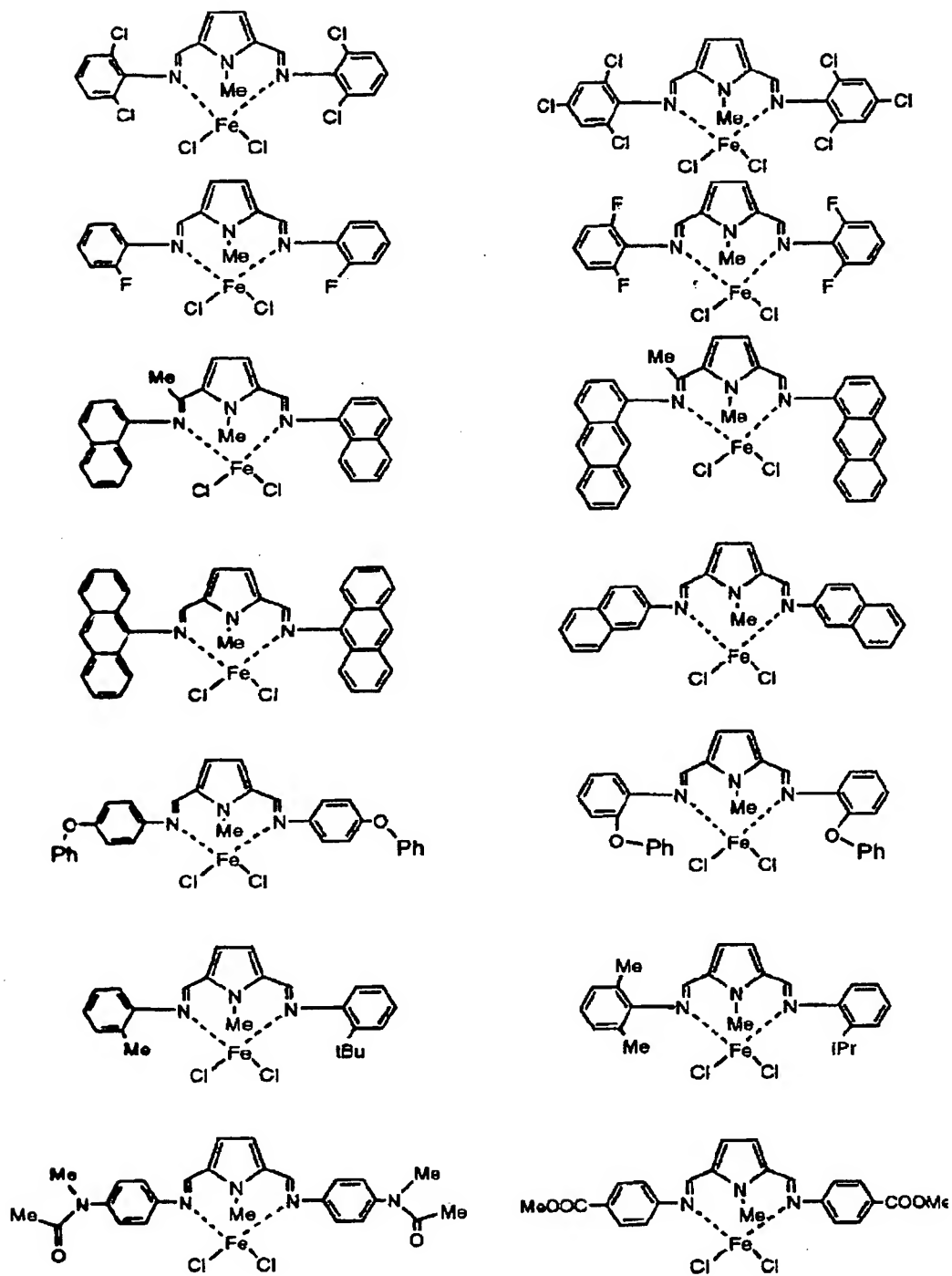
【0088】

【化22】



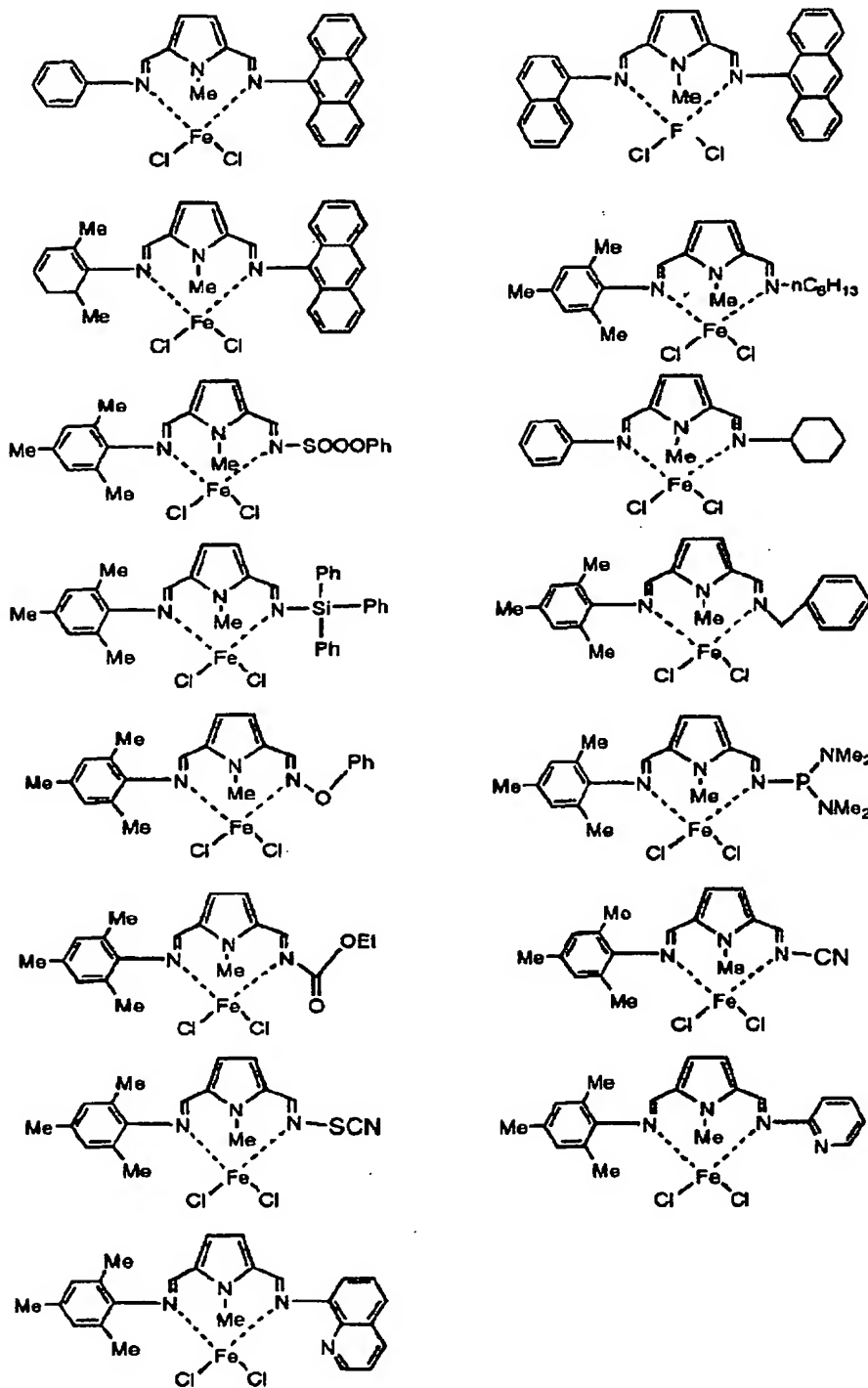
【0089】

【化23】



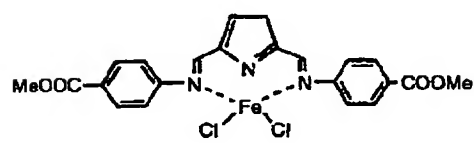
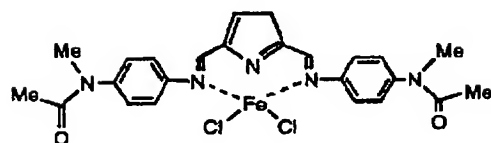
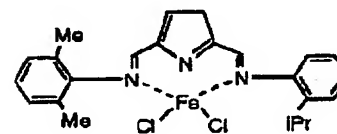
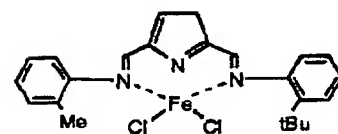
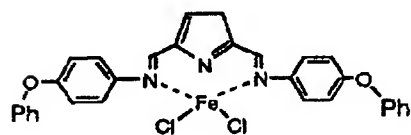
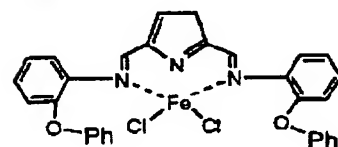
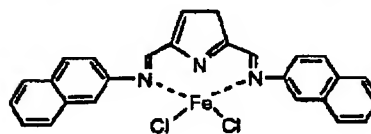
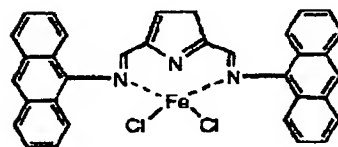
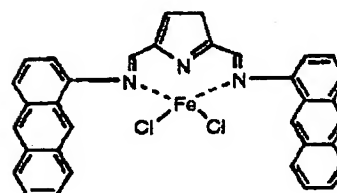
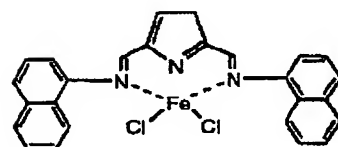
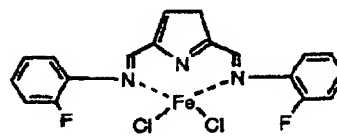
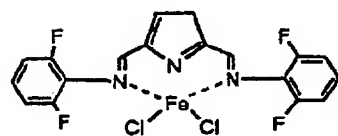
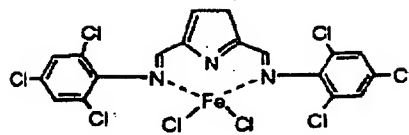
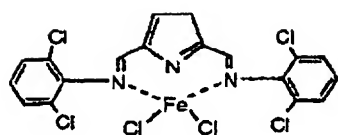
【0090】

【化24】



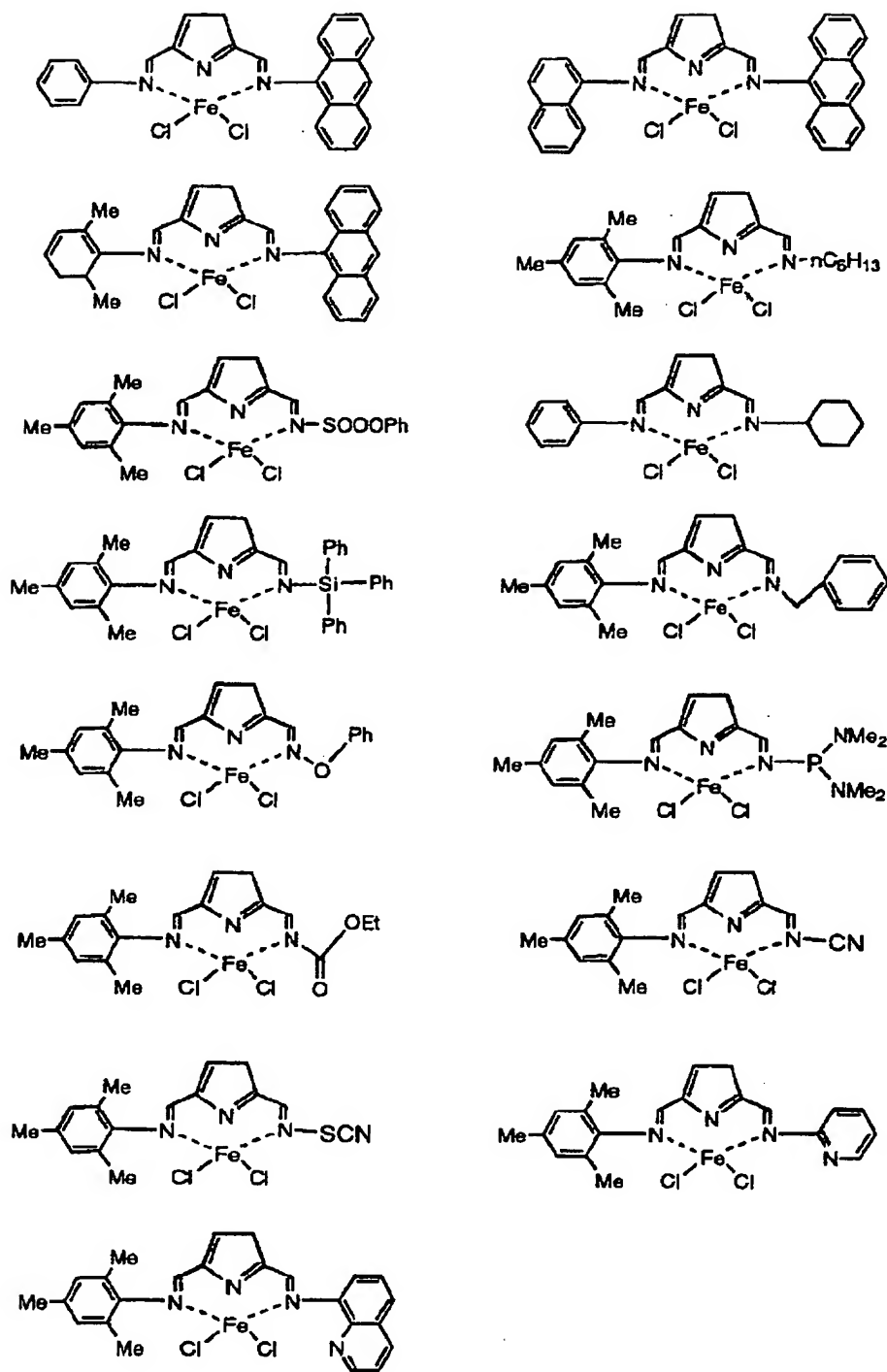
【0091】

【化25】



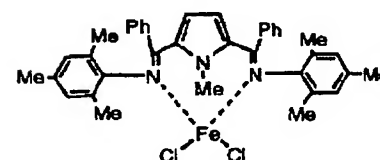
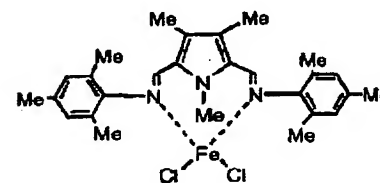
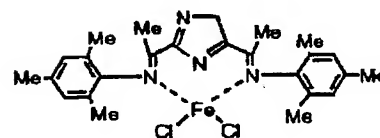
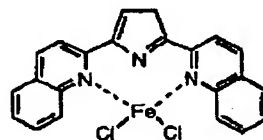
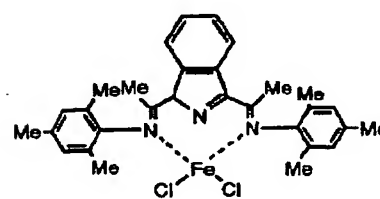
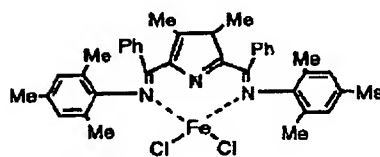
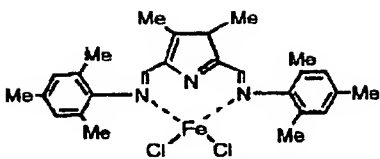
【0092】

【化26】



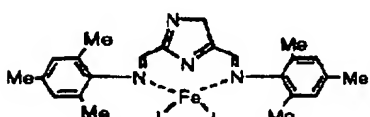
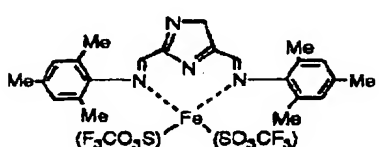
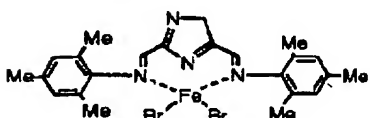
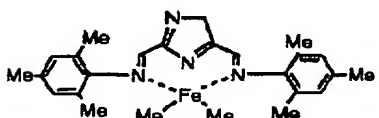
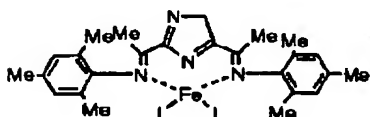
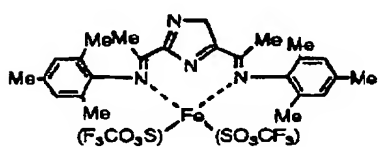
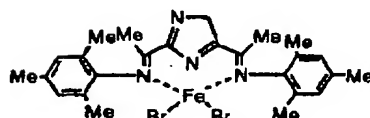
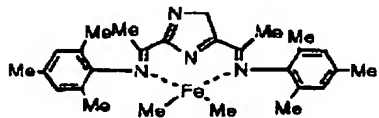
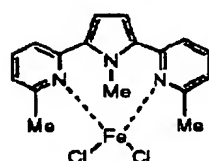
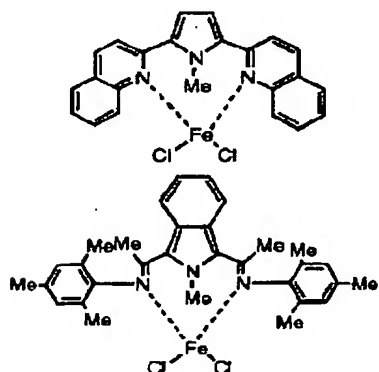
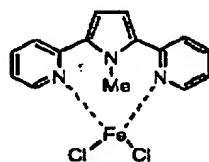
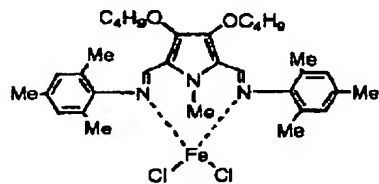
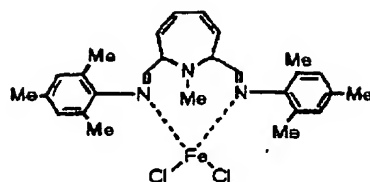
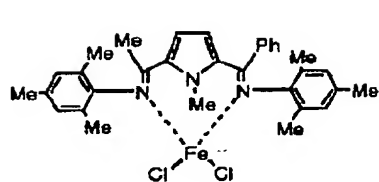
【0093】

【化27】



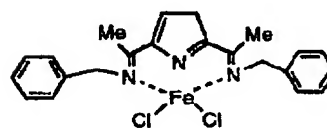
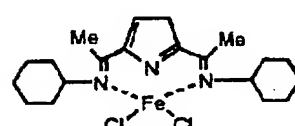
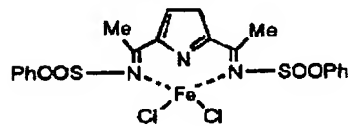
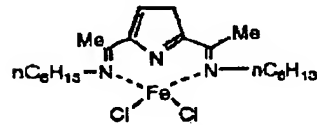
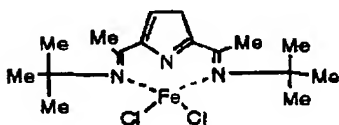
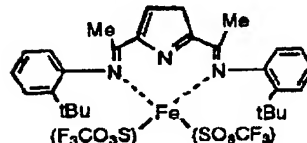
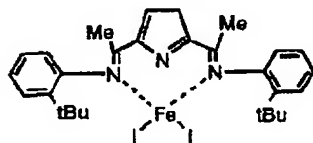
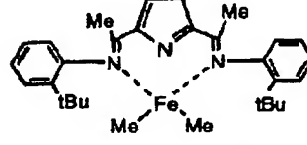
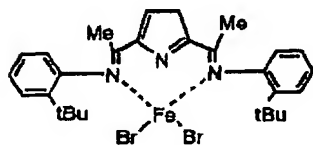
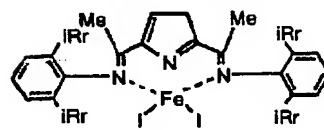
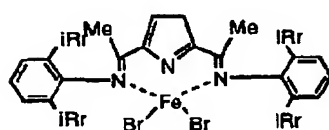
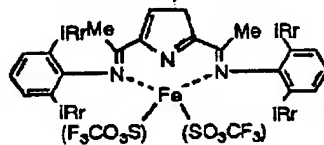
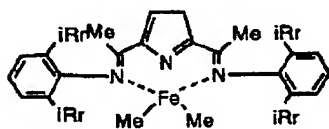
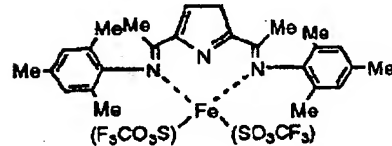
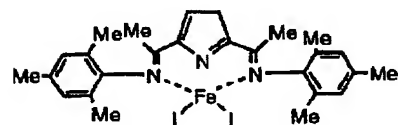
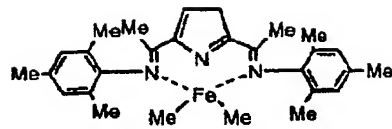
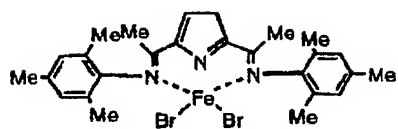
【 0 0 9 4 】

【化28】



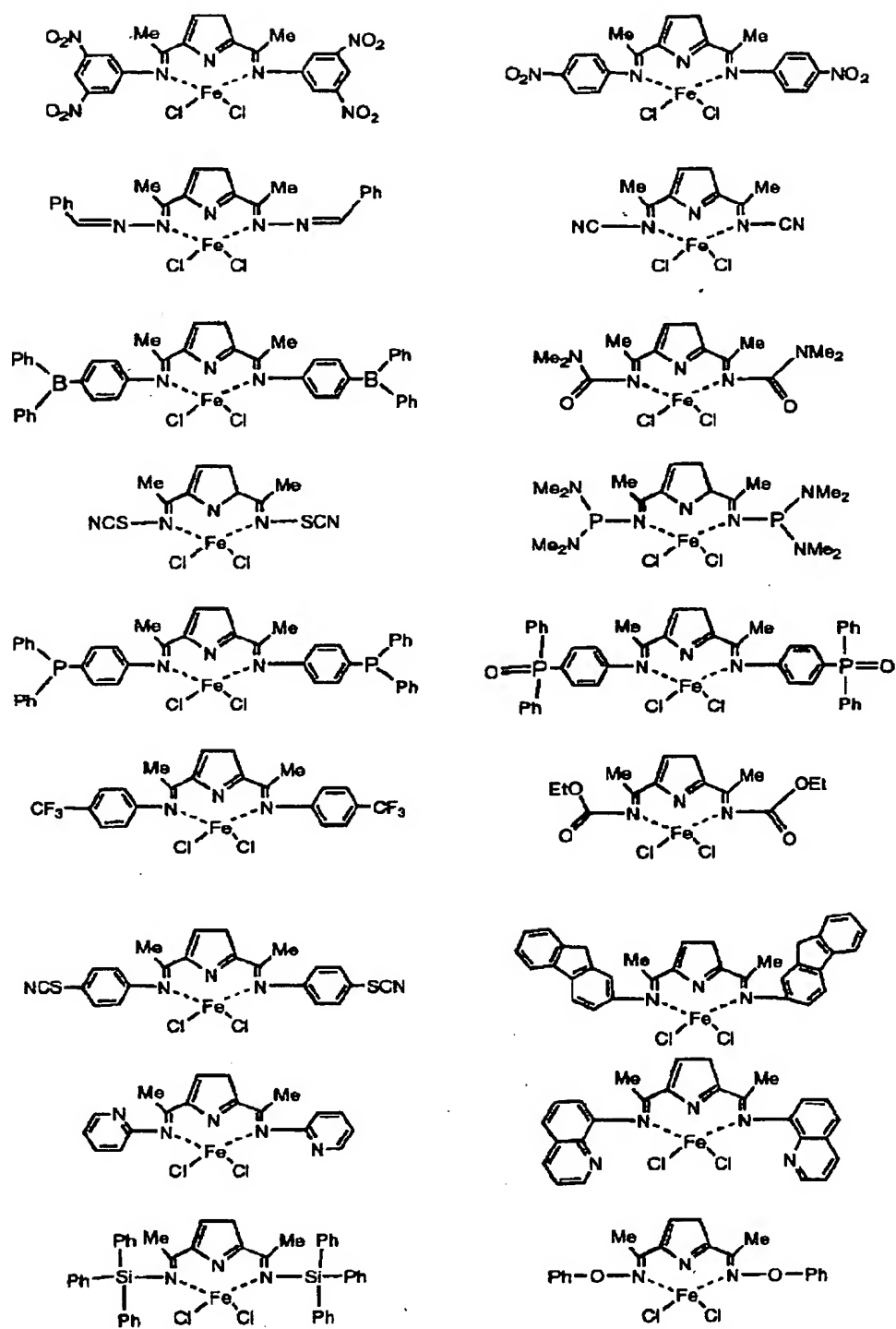
【0095】

【化29】



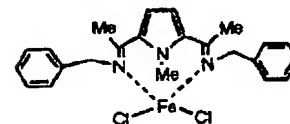
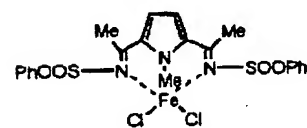
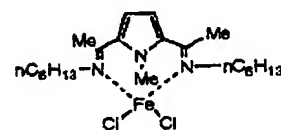
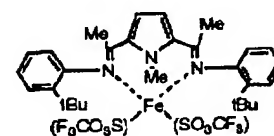
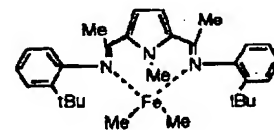
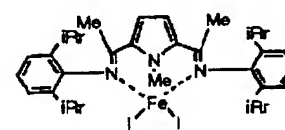
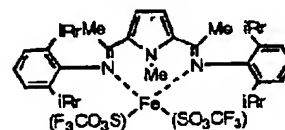
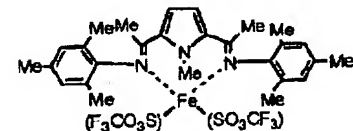
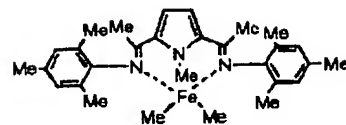
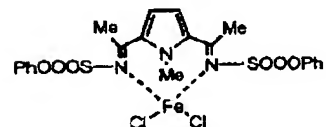
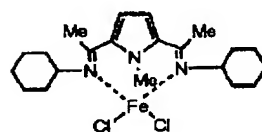
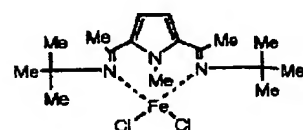
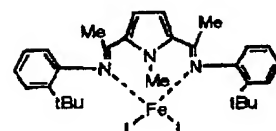
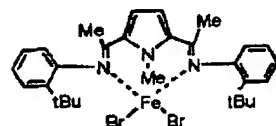
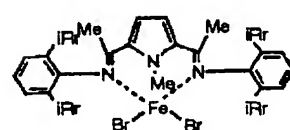
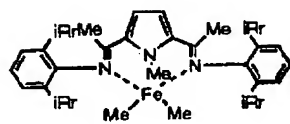
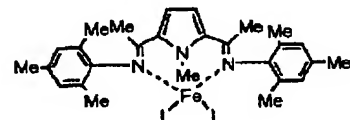
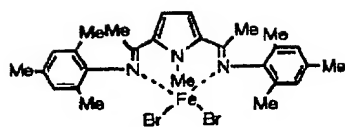
【0096】

【化30】



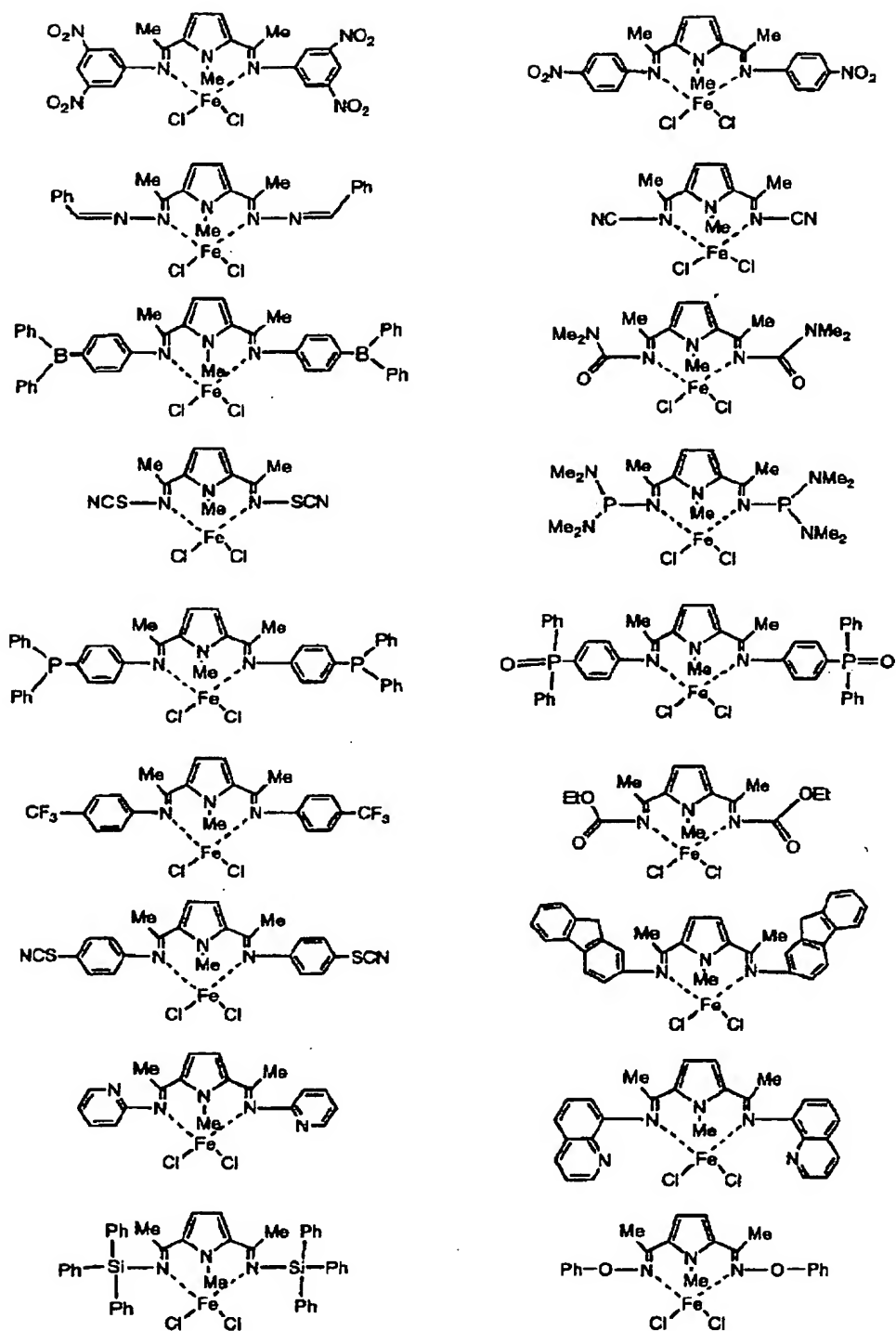
【0097】

【化31】



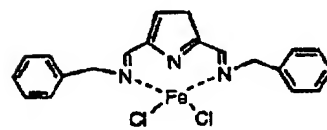
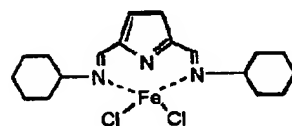
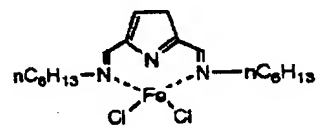
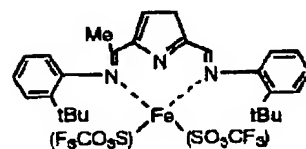
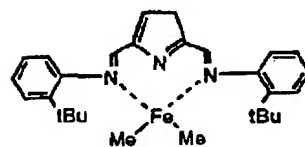
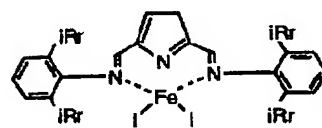
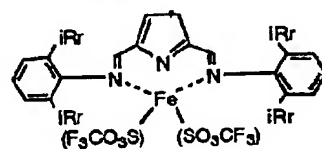
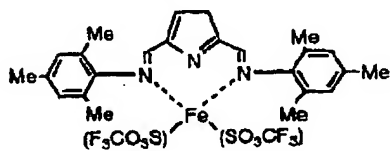
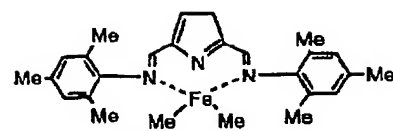
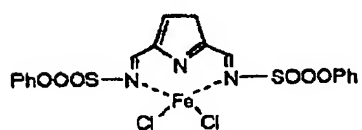
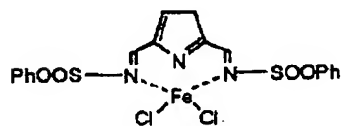
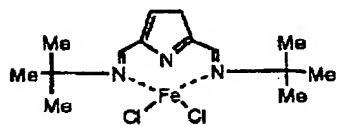
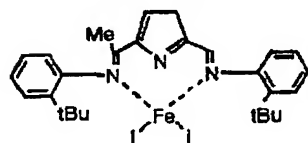
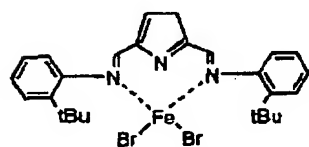
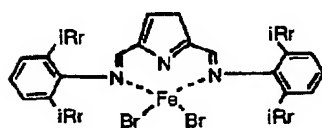
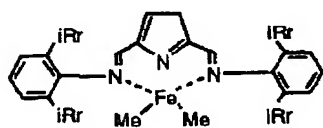
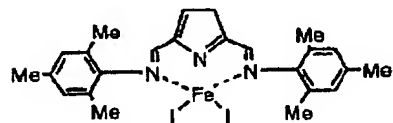
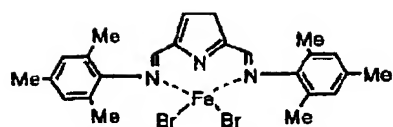
【0098】

【化32】



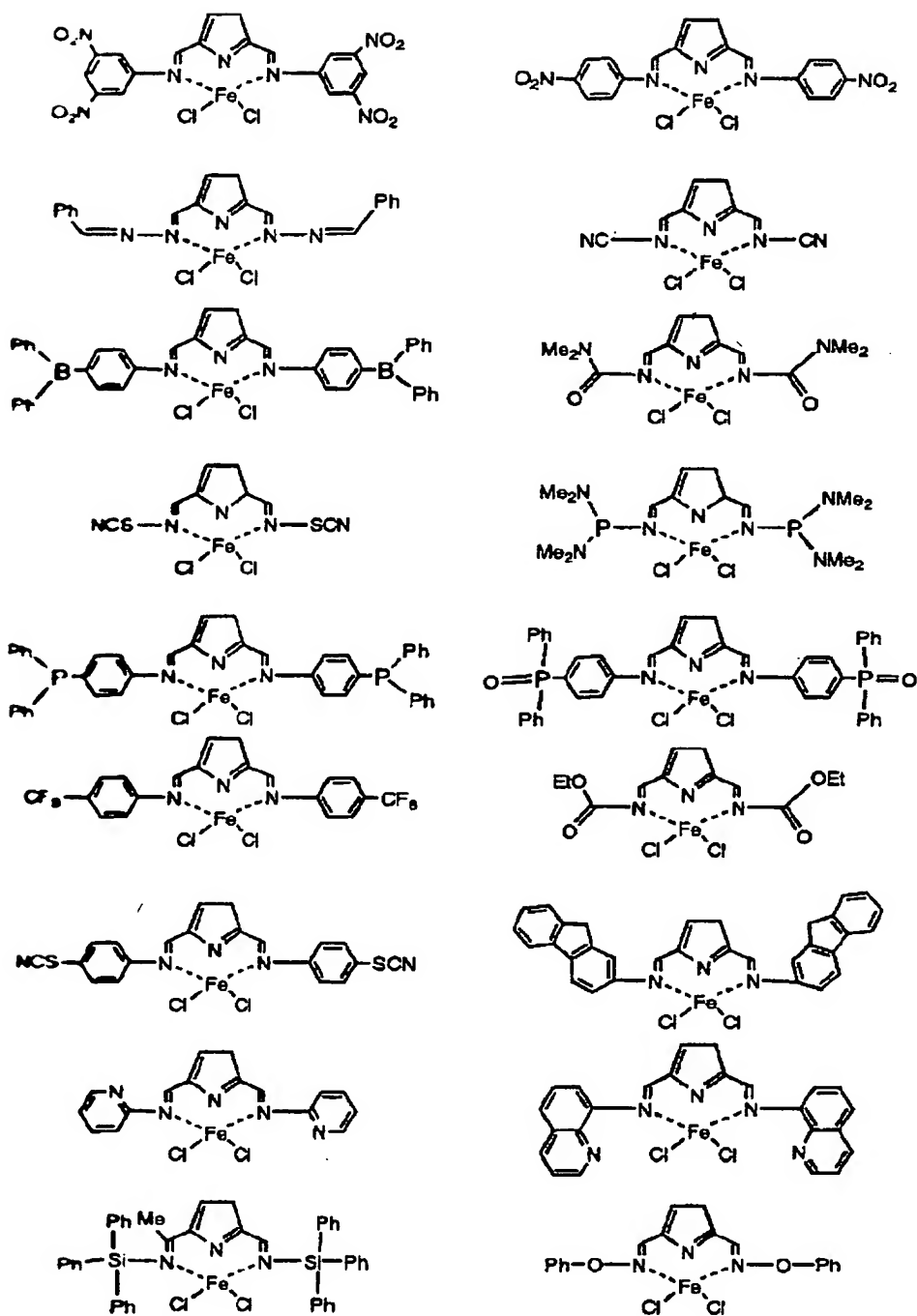
【0099】

【化33】



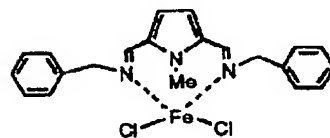
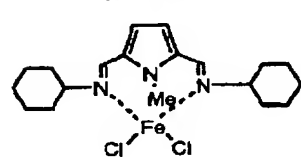
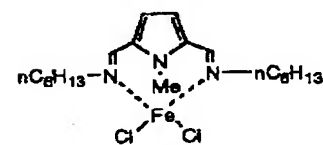
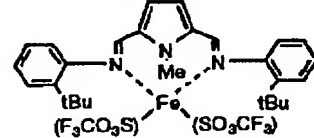
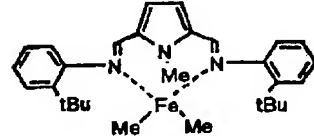
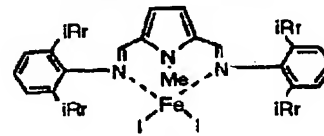
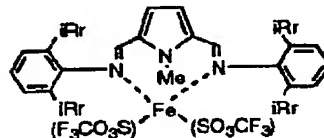
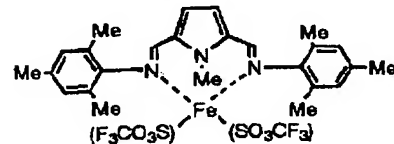
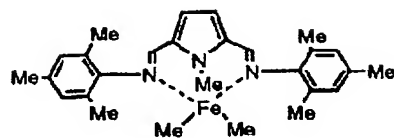
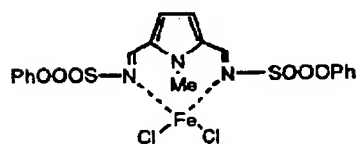
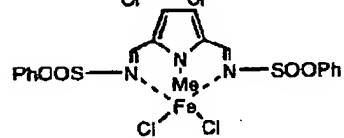
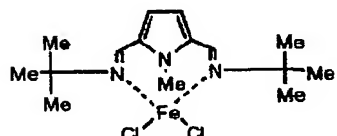
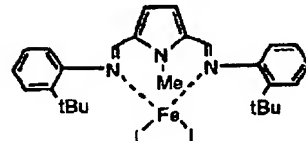
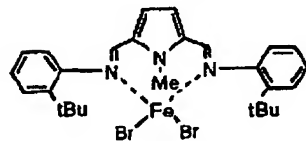
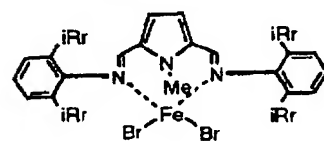
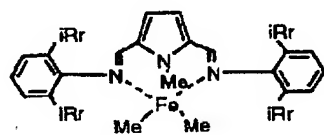
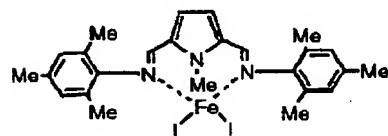
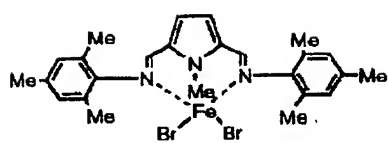
【0100】

【化34】



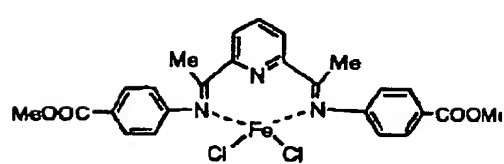
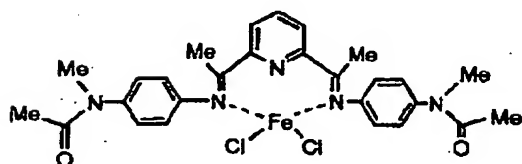
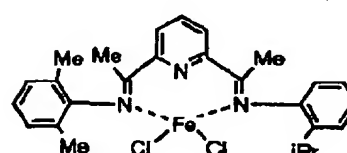
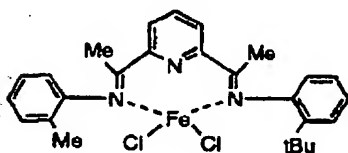
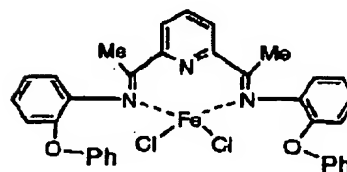
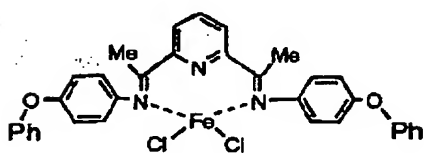
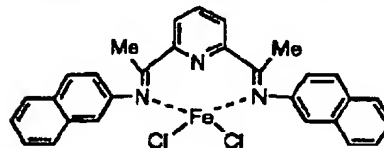
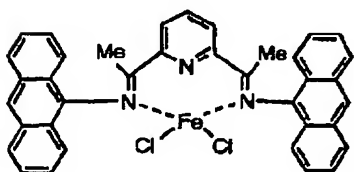
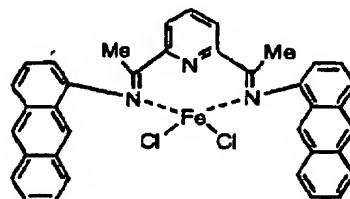
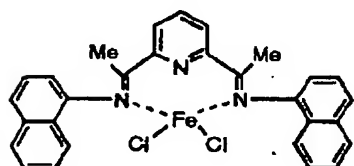
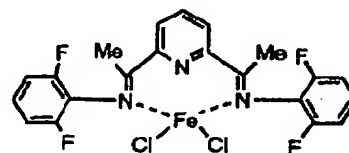
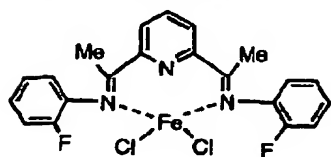
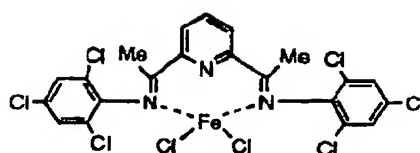
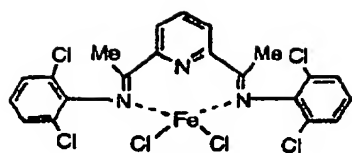
【0101】

【化35】



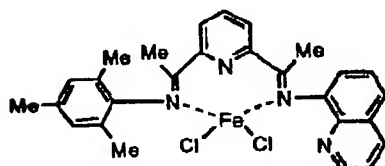
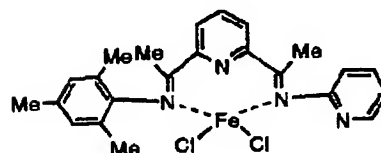
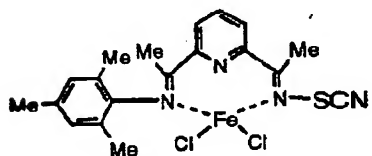
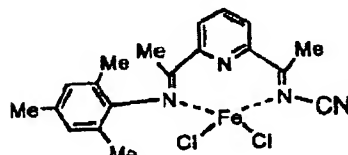
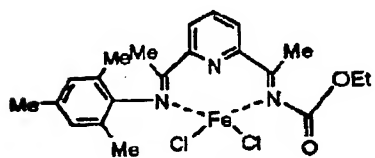
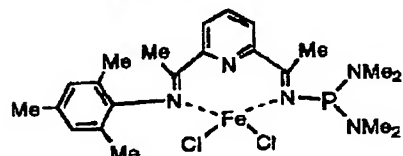
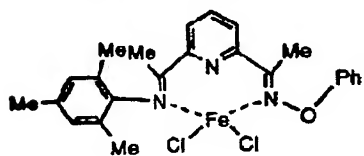
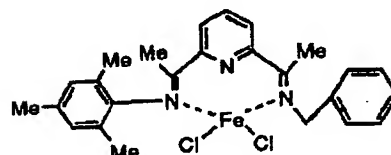
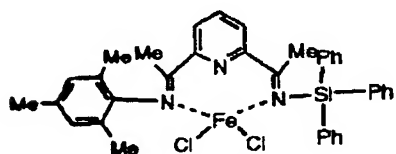
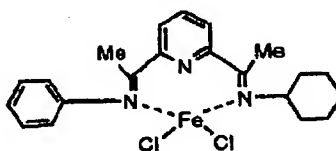
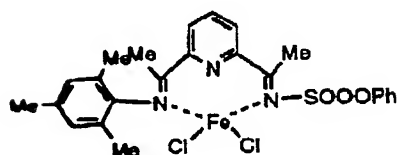
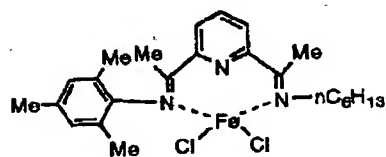
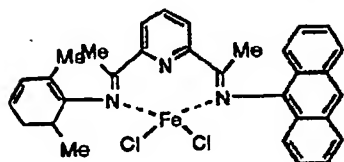
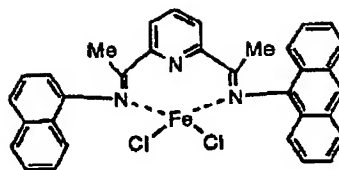
【0102】

【化36】



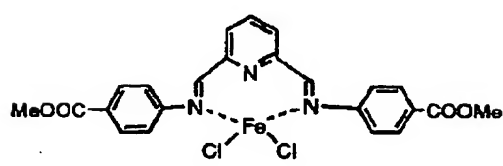
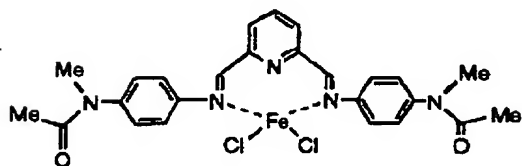
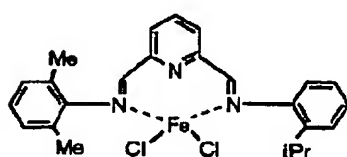
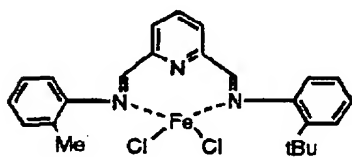
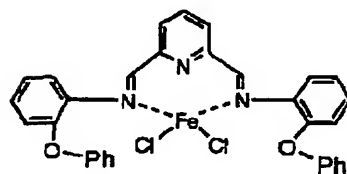
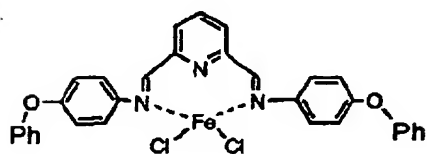
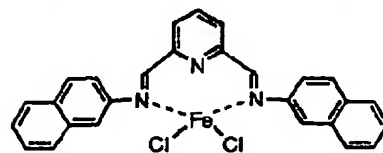
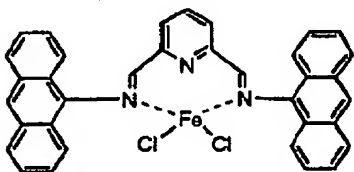
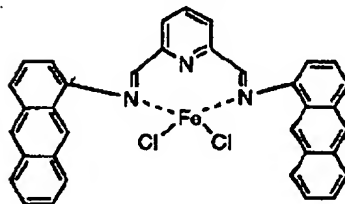
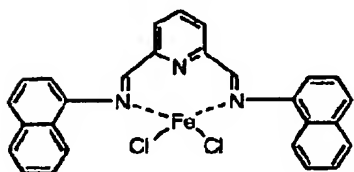
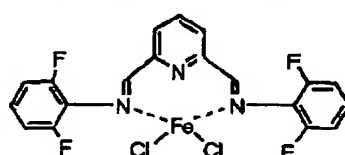
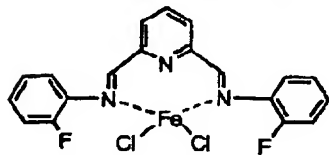
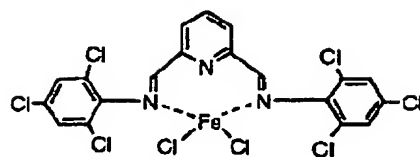
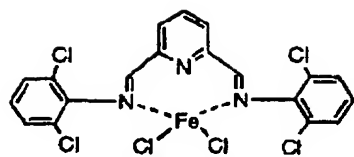
【0103】

【化37】



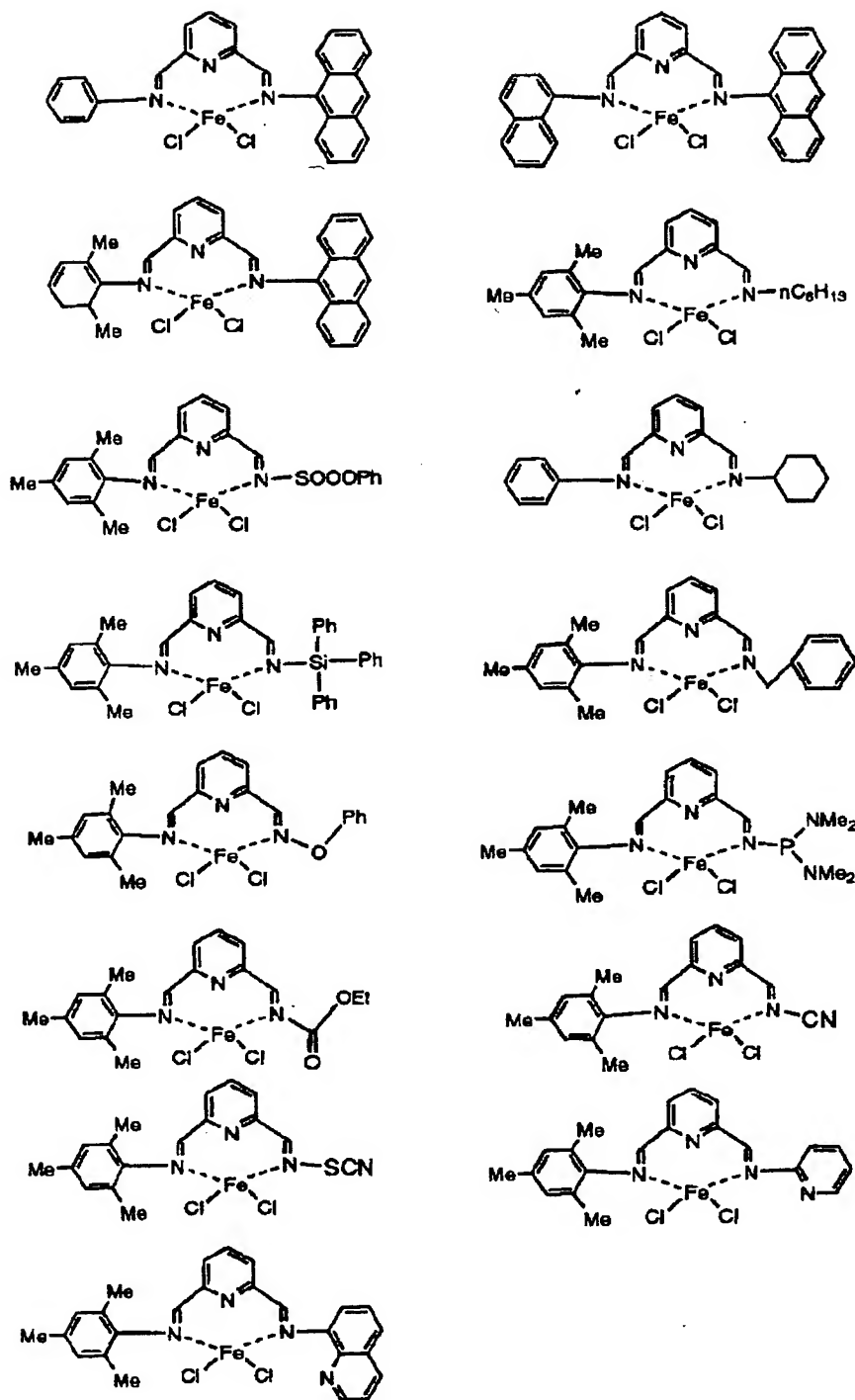
【0104】

【化38】



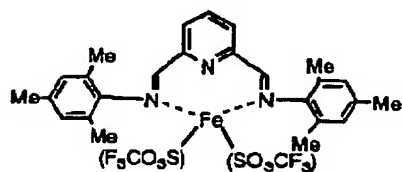
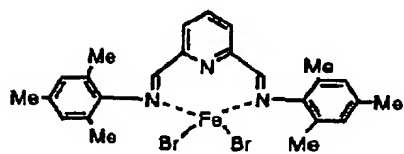
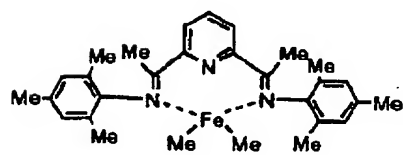
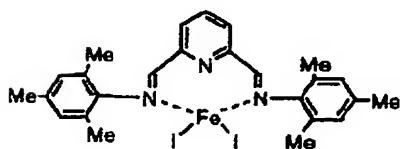
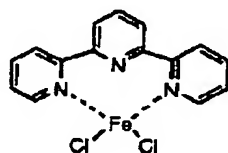
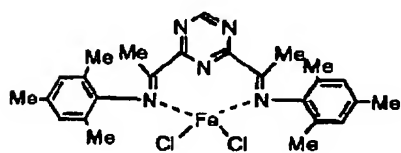
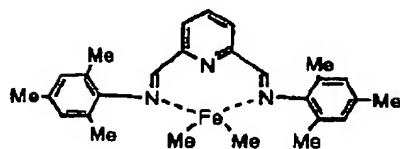
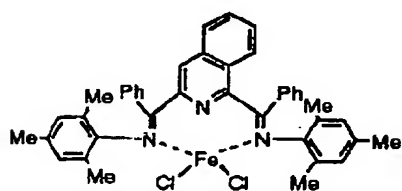
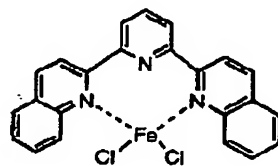
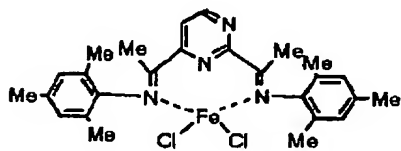
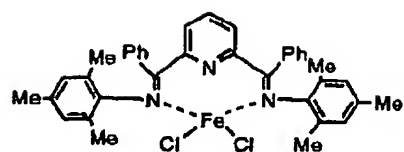
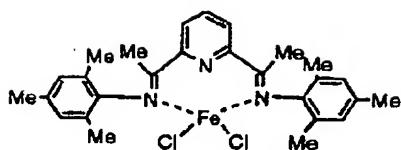
【0105】

【化39】



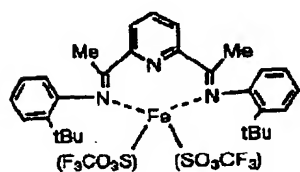
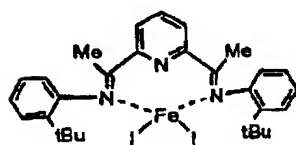
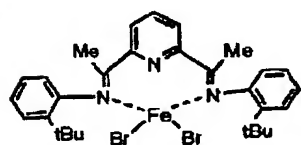
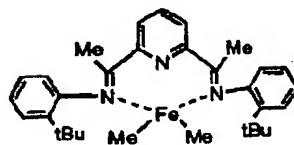
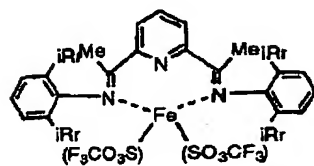
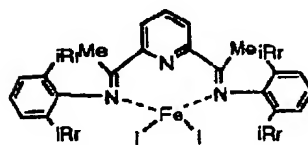
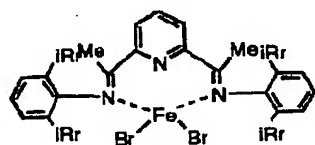
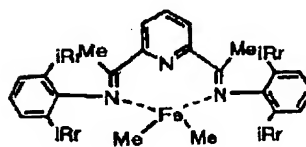
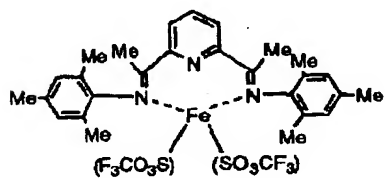
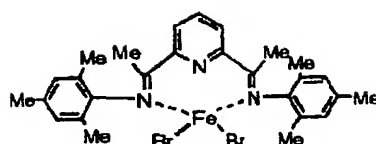
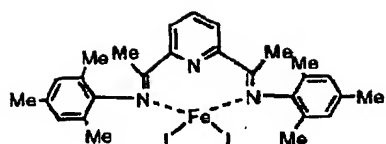
【0106】

【化40】



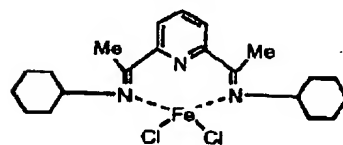
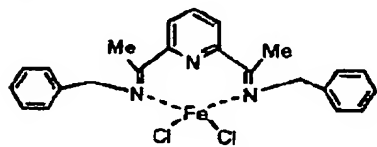
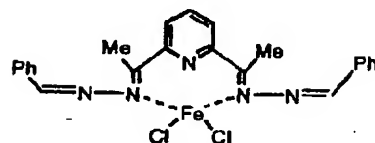
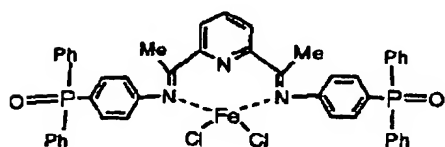
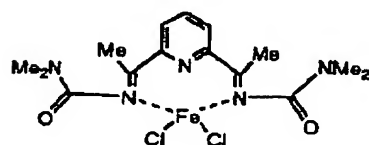
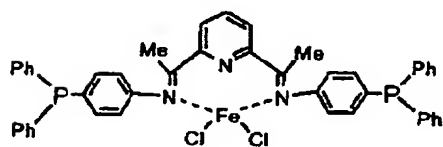
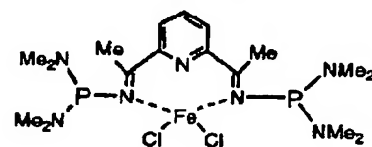
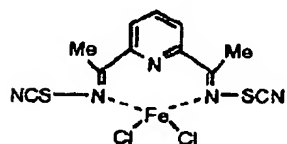
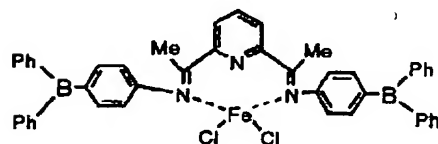
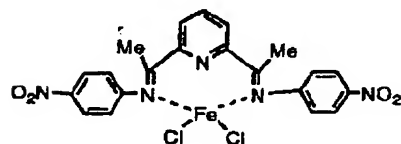
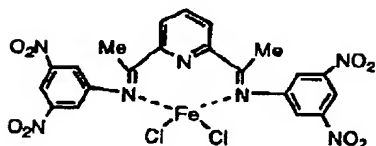
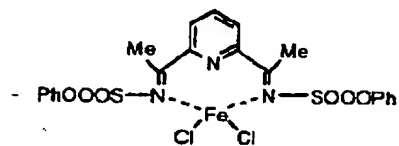
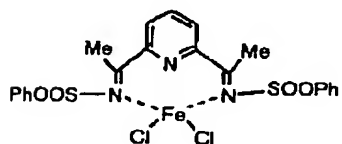
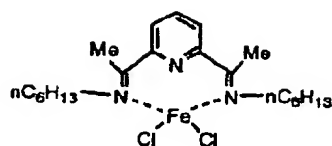
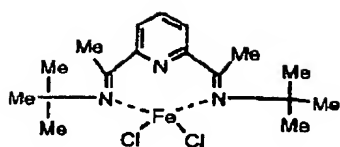
【0107】

【化41】



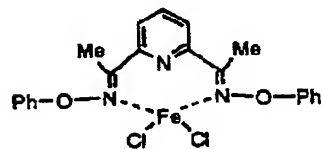
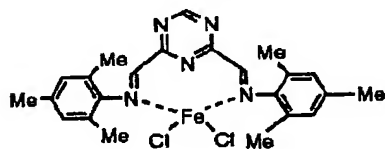
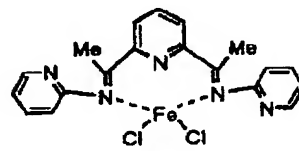
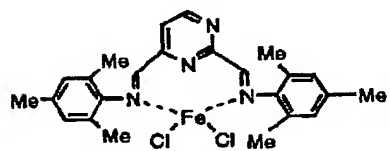
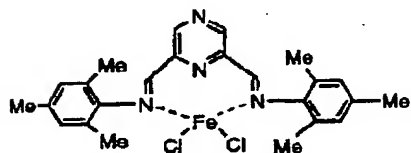
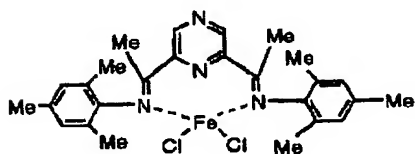
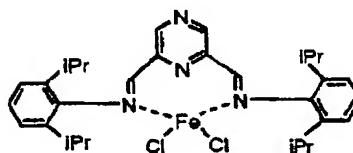
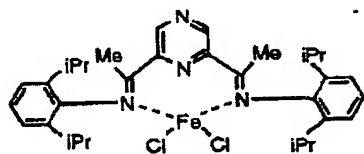
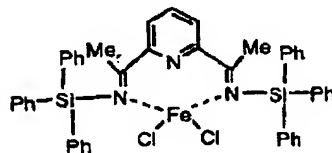
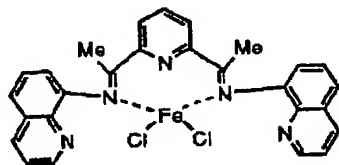
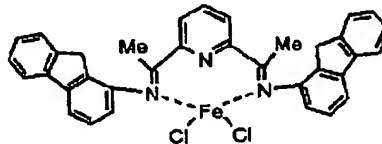
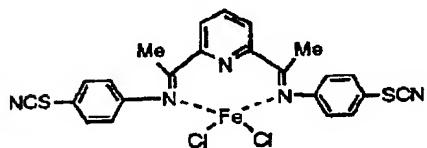
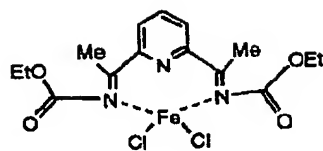
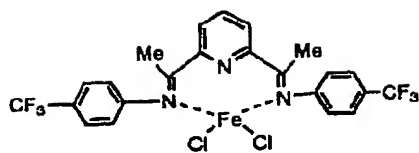
【0108】

【化42】



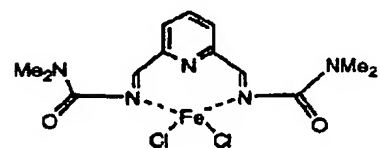
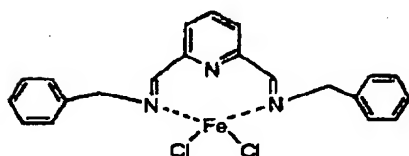
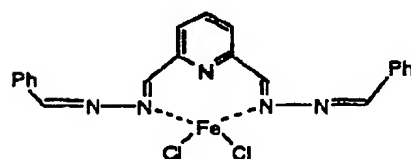
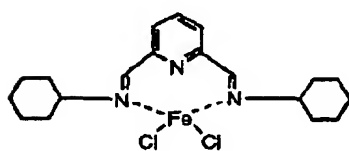
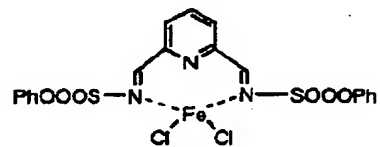
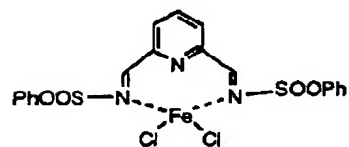
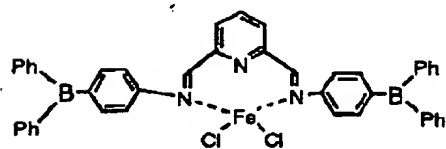
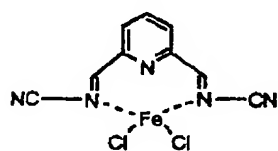
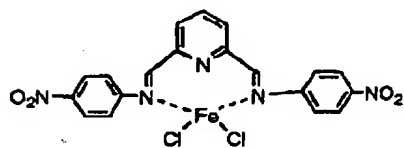
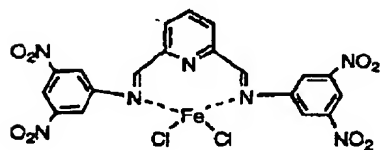
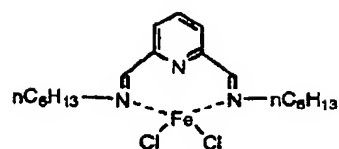
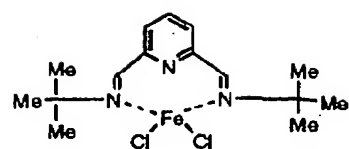
【0109】

【化43】



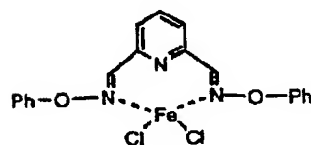
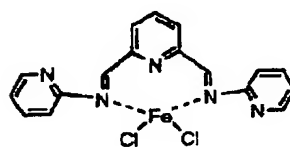
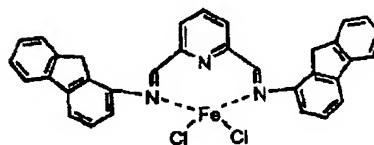
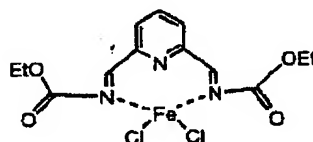
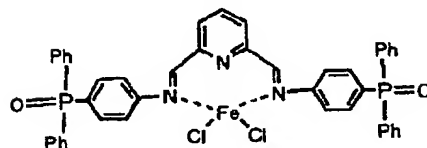
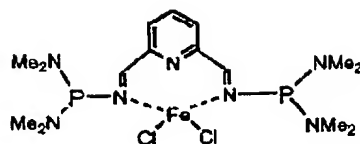
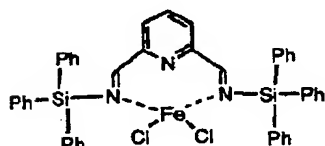
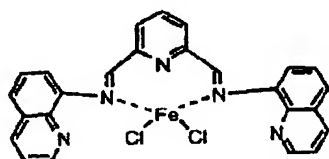
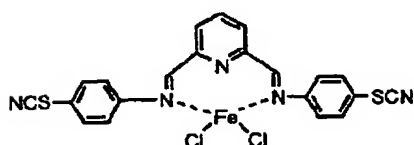
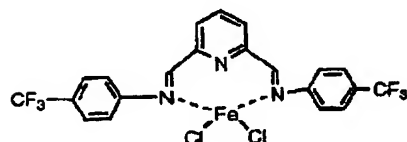
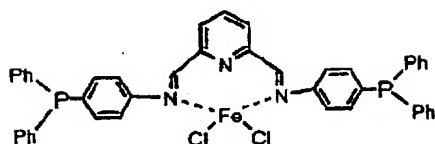
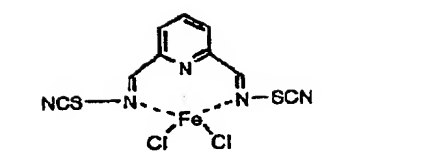
【0110】

【化44】



【0111】

【化45】



【0112】なお、上記例示中、Meはメチル基を示し、Etはエチル基を示し、nPrはn-プロピル基を示し、iPrはi-プロピル基を示し、sBuはsec-ブチル基を示し、tBuはtert-ブチル基を示し、nOctはn-オクチル基、Phはフェニル基を示す。本発明では、上記のような化合物において、鉄をコバルトに置き換えた遷移金属イミン化合物を用いることもできる。

【0113】これらの化合物は単独で用いてもよいし、2種以上を組み合わせ用いてもよい。また上記のような遷移金属アミド化合物(A)は、必要に応じて、微粒子担体化合物(D)と接触させて、担体化合物とともに用いることもできる。微粒子担体化合物としては、無機または有機の化合物であって、粒径が10~300 μm、好ましくは20~200 μmの顆粒状ないしは微粒子状の固体が使用される。このうち無機化合物としては多孔質酸化物が好ましく、具体的にはSiO₂、Al₂O₃、MgO、ZrO₂、TiO₂、B₂O₃、CaO、ZnO、BaO、ThO₂など、またはこれらを含む混合物、たとえばSiO₂-MgO、SiO₂-Al₂O₃、

SiO₂-TiO₂、SiO₂-V₂O₅、SiO₂-Cr₂O₃、SiO₂-TiO₂-MgOなどを例示することができる。これらの中でSiO₂およびAl₂O₃からなる群から選ばれた少なくとも1種の成分を主成分とするものが好ましい。

【0114】なお、上記無機酸化物には少量のNa₂CO₃、K₂CO₃、CaCO₃、MgCO₃、Na₂SO₄、Al₂(SO₄)₃、BaSO₄、KNO₃、Mg(NO₃)₂、Al(NO₃)₃、Na₂O、K₂O、Li₂Oなどの炭酸塩、硫酸塩、硝酸塩、酸化物成分を含有していても差しつかえない。このような微粒子担体は種類および製法によりその性状は異なるが、本発明に好ましく用いられる担体は、比表面積が50~1000 m²/g、好ましくは100~700 m²/gの範囲にあり、細孔容積が0.3~2.5 cm³/gの範囲にあることが望ましい。該担体は、必要に応じて100~1000℃、好ましくは150~700℃で焼成して用いられる。

【0115】さらに、本発明に用いることのできる微粒子担体としては、粒径が10~300 μmの範囲にあ

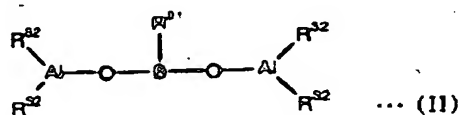
る有機化合物(D)の種類としては微粒子状固体を挙げることから、(D)は有機化合物としては、エチレン、プロピレン、1,3-ブタジエン、1,4-ペンテンなどの炭素原子数が1～10のオレフィンを主成分として生成される共重合体またはビニルシクロヘキサン、スチレンを主成分として生成される重合体または共重合体を例示することになる。

【0116】(B-1)ホウ素含有有機アルミニウムオキシ化合物

本発明で用いられる(B-1)ホウ素含有有機アルミニウムオキシ化合物は、下記一般式(II)で表される化合物である。

【0117】

【化16】



【0118】式中、R³¹は炭素原子数が1～10の炭化水素基を示す。R³¹は互いに同一でも異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子または炭素原子数が1～10の炭化水素基を示す。前記一般式(II)で表されるホウ素含有有機アルミニウムオキシ化合物は、下記一般式(III)で表されるアルキルボロン酸と

$R^{31}-B \quad (OH) \quad \dots (III)$

(式中、R³¹は前記と同じ基を示す。)有機アルミニウム化合物とを、不活性ガス雰囲気下で不活性溶媒中で、-80℃～室温の温度で1分～24時間反応させることにより製造できる。

【0119】前記一般式(III)で表されるアルキルボロン酸の具体的なものとしては、メチルボロン酸、エチルボロン酸、イソプロピルボロン酸、n-プロピルボロン酸、n-ブチルボロン酸、イソブチルボロン酸、n-ヘキシルボロン酸、シクロヘキシルボロン酸、フェニルボロン酸、3,5-ジフルオロフェニルボロン酸、ペンタフルオロフェニルボロン酸、3,5-ビス(トリフルオロメチル)フェニルボロン酸などが挙げられる。これらの中では、メチルボロン酸、n-ブチルボロン酸、イソブチルボロン酸、3,5-ジフルオロフェニルボロン酸、ペンタフルオロフェニルボロン酸が好ましい。これらは1種単独でまたは2種以上組み合わせて用いられる。

【0120】このようなアルキルボロン酸と反応させる有機アルミニウム化合物として具体的には、後述する(C-1)に属する有機アルミニウム化合物として例示するものと同様の有機アルミニウム化合物を挙げることができる。これらのうち、トリアルキルアルミニウム、トリシクロアルキルアルミニウムが好ましく、特にトリメチルアルミニウム、トリエチルアルミニウム、トリイソブチルアルミニウムが好ましい。これらは1種単独でまたは2種以上組み合わせて用いられる。

【0121】上記のような(B-1)ホウ素含有有機アルミニウムオキシ化合物は、1種単独でまたは2種以上組み合わせて用いられる。また上記のようなホウ素含有有機アルミニウムオキシ化合物(B-1)は、上述したような微粒子状担体(D)と接触させて、微粒子状担体とともに用いることもできる。微粒子状担体(D)と接触させるに際しては、ホウ素含有有機アルミニウムオキシ化合物(B-1)のみを微粒子状担体と接触させてもよいし、ホウ素含有有機アルミニウムオキシ化合物(B-1)と遷移金属アミド化合物(A)との両成分を微粒子状担体(D)と接触させてもよい。

【0122】(B-2)粘土、粘土鉱物またはイオン交換性層状化合物

本発明で用いられる粘土は、通常粘土鉱物を主成分として構成され、イオン交換性層状化合物は、イオン結合などによって構成される面が互いに弱い結合力で平行に積み重なった結晶構造をとる化合物であって含有するイオンが交換可能なものである。なお大部分の粘土鉱物はイオン交換性層状化合物である。また、粘土、粘土鉱物またはイオン交換性層状化合物として、六方細密パッキング型、アンチモン型、CdCl₂型、CdI₂型などの層状の結晶構造を有するイオン結晶性化合物などを例示することができる。これらの粘土、粘土鉱物、イオン交換性層状化合物としては、天然産のものに限らず、人工合成物を使用することもできる。

【0123】このような粘土、粘土鉱物として具体的には、カオリン、ベントナイト、木節粘土、ガイロメ粘土、アロフェン、ヒシゲル石、パイロフィライト、ウンモ群、モンモリロナイト群、バーミキュライト、リョクデイ石群、パリゴルスカイト、カオリナイト、ナクライト、ディッカイト、ハロイサイトなどが挙げられ、イオン交換性層状化合物としては、 $\alpha-Zr(HAsO_4)_2 \cdot H_2O$ 、 $\alpha-Zr(HPO_4)_2$ 、 $\alpha-Zr(KPO_4)_2 \cdot 3H_2O$ 、 $\alpha-Ti(HPO_4)_2$ 、 $\alpha-Ti(HAsO_4)_2 \cdot H_2O$ 、 $\alpha-Sn(HPO_4)_2 \cdot H_2O$ 、 $\gamma-Zr(HPO_4)_2$ 、 $\gamma-Ti(HPO_4)_2$ 、 $\gamma-Ti(NH_4PO_4)_2 \cdot H_2O$ などの多価金属の結晶性酸性塩などが挙げられる。

【0124】このような粘土、粘土鉱物、イオン交換性層状化合物は、水銀圧入法で測定した半径20Å以上の細孔容積が0.1cc/g以上のものが好ましく、0.3～5cc/gのものが特に好ましい。ここで、細孔容積の測定は、水銀ポロシメーターを用いた水銀圧入法により細孔半径として20～3×10⁴オングストロームの範囲で測定される。半径20Å以上の細孔容積が0.1cc/gより小さい化合物を用いた場合には、高い重合活性が得られにくい傾向がある。

【0125】本発明で用いられる粘土、粘土鉱物は、化学処理を施すことができる。化学処理としては、表面に付着している不純物を除去する表面処理と粘土の結晶構

造に影響を与える処理のいずれをも用いることができる。具体的には酸処理、アルカリ処理、塩類処理、有機物処理などが挙げられる。酸処理は、表面の不純物を取り除くほか、結晶構造中のAl、Fe、Mgなどの陽イオンを溶出させることによって表面積を増大させる。アルカリ処理では粘土の結晶構造が破壊され、粘土の構造の変化をもたらす。また、塩類処理、有機物処理では、イオン複合体、分子複合体、有機誘導体などを形成し、表面積や層間距離を変えることができる。

【0126】本発明で用いられるイオン交換性層状化合物は、イオン交換性を利用し、層間の交換性イオンを別の大きな嵩高いイオンと交換することにより、層間が拡大した状態の層状化合物を得ることもできる。ここで嵩高いイオンは、層状構造を支える支柱的な役割を担っており、ピラーと呼ばれる。また、層状物質の層間に別の物質（ゲスト化合物）を導入することをインターカレーションという。

【0127】インターカレーションするゲスト化合物としては、 $TiCl_4$ 、 $ZrCl_4$ などの陽イオン性無機化合物； $Ti(OR)_4$ 、 $Zr(OR)_4$ 、 $PO(OR)_3$ 、 $B(OR)_3$ 、（Rは炭化水素基など）などの金属アルコラート； $[Al_{13}O_4(OH)_{24}]^{7+}$ 、 $[Zr_4(OH)_{14}]^{2+}$ 、 $[Fe_3O(OCOCH_3)_6]^+$ などの金属水酸化物イオンなどが挙げられる。これらの化合物は単独または2種以上組み合わせて用いられる。また、これらの化合物をインターカレーションする際に、 $Si(OR)_4$ 、 $Al(OR)_3$ 、 $Ge(OR)_4$ （Rは炭化水素基など）などの金属アルコラートなどを加水分解して得た重合物、 SiO_2 などのコロイド状無機化合物などを共存させることもできる。また、ピラーの他の例としては上記水酸化物イオンを層間にインターカレーションした後に加熱脱水することにより生成する酸化物などが挙げられる。

【0128】本発明で用いられる粘土、粘土鉱物、イオン交換性層状化合物は、そのまま用いてもよいし、ボールミルによる粉碎、ふるい分けなどの処理を行った後に用いてもよい。また、新たに水を添加吸着させ、あるいは加熱脱水処理した後用いてもよい。さらに、単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。これらの中で、好ましいものは粘土または粘土鉱物であり、特に好ましいものはモンモリロナイトである。

【0129】本発明において、（B）成分として（B-2）粘土、粘土鉱物またはイオン交換性層状化合物が用いられる際には、後述する（C）有機金属化合物が同時に用いられる。この際、用いられる（C）有機金属化合物としては、後述の（C-1）に属する有機アルミニウム化合物が好ましく用いられ、特にトリアルキルアルミニウムが好ましく用いられる。

【0130】（C）有機金属化合物

本発明で用いられる（C）有機金属化合物として、具体

的には下記のような周期表第1、2族および第12、13族の有機金属化合物が用いられる。

（C-1）一般式 $R^a_m Al(OR^b)_n H_p X_q$

（式中、 R^a および R^b は、互いに同一でも異なってもよく、炭素原子数が1～15、好ましくは1～4の炭化水素基を示し、Xはハロゲン原子を示し、mは $0 < m \leq 3$ 、nは $0 \leq n < 3$ 、pは $0 \leq p < 3$ 、qは $0 \leq q < 3$ の数であり、かつ $m+n+p+q=3$ である。）で表される有機アルミニウム化合物。

【0131】（C-2）一般式 $M^2 AlR^a_4$

（式中、 M^2 はLi、NaまたはKを示し、 R^a は炭素原子数が1～15、好ましくは1～4の炭化水素基を示す。）で表される1族金属とアルミニウムとの錯アルキル化合物。

（C-3）一般式 $R^a R^b M^3$

（式中、 R^a および R^b は、互いに同一でも異なってもよく、炭素原子数が1～15、好ましくは1～4の炭化水素基を示し、 M^3 はMg、ZnまたはCdを示す。）で表される2族または12族金属のジアルキル化合物。

【0132】前記（C-1）に属する有機アルミニウム化合物としては、次のような化合物などを例示できる。

一般式 $R^a_m Al(OR^b)_{3-m}$

（式中、 R^a および R^b は、互いに同一でも異なってもよく、炭素原子数が1～15、好ましくは1～4の炭化水素基を示し、mは好ましくは1.5 $\leq m \leq 3$ の数である。）で表される有機アルミニウム化合物、

一般式 $R^a_m AlX_{3-m}$

（式中、 R^a は炭素原子数が1～15、好ましくは1～4の炭化水素基を示し、Xはハロゲン原子を示し、mは好ましくは $0 < m < 3$ である。）で表される有機アルミニウム化合物、

一般式 $R^a_m AlH_{3-m}$

（式中、 R^a は炭素原子数が1～15、好ましくは1～4の炭化水素基を示し、mは好ましくは $2 \leq m < 3$ である。）で表される有機アルミニウム化合物、

一般式 $R^a_m Al(OR^b)_n X_q$

（式中、 R^a および R^b は、互いに同一でも異なってもよく、炭素原子数が1～15、好ましくは1～4の炭化水素基を示し、Xはハロゲン原子を示し、mは $0 < m \leq 3$ 、nは $0 \leq n < 3$ 、qは $0 \leq q < 3$ の数であり、かつ $m+n+q=3$ である。）で表される有機アルミニウム化合物。

【0133】（C-1）に属するアルミニウム化合物としてより具体的にはトリメチルアルミニウム、トリエチルアルミニウム、トリ*n*-ブチルアルミニウム、トリプロピルアルミニウム、トリペンチルアルミニウム、トリヘキシルアルミニウム、トリオクチルアルミニウム、トリデシルアルミニウムなどのトリ*n*-アルキルアルミニウム；トリイソプロピルアルミニウム、トリイソブチルアルミニウム

ウム、トリsec-ブチルアルミニウム、トリ tert-ブチルアルミニウム、トリ2-メチルブチルアルミニウム、トリ3-メチルブチルアルミニウム、トリ2-メチルペンチルアルミニウム、トリ3-メチルペンチルアルミニウム、トリ4-メチルペンチルアルミニウム、トリ2-メチルヘキシルアルミニウム、トリ3-メチルヘキシルアルミニウム、トリ2-エチルヘキシルアルミニウムなどのトリ分岐鎖アルキルアルミニウム；トリシクロヘキシルアルミニウム、トリシクロオクチルアルミニウムなどのトリシクロアルキルアルミニウム；トリフェニルアルミニウム、トリトリルアルミニウムなどのトリアリールアルミニウム；ジイソブチルアルミニウムハイドライド、ジイソブチルアルミニウムハイドライドなどのジアルキルアルミニウムハイドライド；

$(i-C_4H_9)_xAl_y(C_5H_{10})_z$ (式中、 x 、 y 、 z は正の数であり、 $z \geq 2x$ である。)などで表されるイソプレニルアルミニウムなどのアルケニルアルミニウム；イソブチルアルミニウムメトキシド、イソブチルアルミニウムエトキシド、イソブチルアルミニウムイソプロポキシドなどのアルキルアルミニウムアルコキシド；ジメチルアルミニウムメトキシド、ジエチルアルミニウムエトキシド、ジブチルアルミニウムブトキシドなどのジアルキルアルミニウムアルコキシド；エチルアルミニウムセスキエトキシド、ブチルアルミニウムセスキブトキシドなどのアルキルアルミニウムセスキアルコキシド；

$R^{a_{2.5}}Al(OR^b)_{0.5}$ などで表される平均組成を有する部分的にアルコキシ化されたアルキルアルミニウム；ジエチルアルミニウムフェノキシド、ジエチルアルミニウム(2,6-ジ-*tert*-ブチル-4-メチルフェノキシド)、エチルアルミニウムビス(2,6-ジ-*tert*-ブチル-4-メチルフェノキシド)、ジイソブチルアルミニウム(2,6-ジ-*tert*-ブチル-4-メチルフェノキシド)、イソブチルアルミニウムビス(2,6-ジ-*tert*-ブチル-4-メチルフェノキシド)などのアルキルアルミニウムアリーロキシド；ジメチルアルミニウムクロリド、ジエチルアルミニウムクロリド、ジブチルアルミニウムクロリド、ジエチルアルミニウムブロミド、ジイソブチルアルミニウムクロリドなどのジアルキルアルミニウムハライド；エチルアルミニウムセスキクロリド、ブチルアルミニウムセスキクロリド、エチルアルミニウムセスキブロミドなどのアルキルアルミニウムセスキハライド；エチルアルミニウムジクロリド、プロピルアルミニウムジクロリド、ブチルアルミニウムジブロミドなどのアルキルアルミニウムジハライドなどの部分的にハロゲン化されたアルキルアルミニウム；ジエチルアルミニウムヒドリド、ジブチルアルミニウムヒドリドなどのジアルキルアルミニウムヒドリド；エチルアルミニウムジヒドリド、プロピルアルミニウムジヒドリドなどのアルキルアルミニウムジヒドリドなどその他の部分的に水素化されたアルキルアルミニウム；

エチルアルミニウムエトキシクロリド、ブチルアルミニウムブトキシクロリド、エチルアルミニウムエトキシブロミドなどの部分的にアルコキシ化およびハロゲン化されたアルキルアルミニウムなどを挙げることができる。

【0134】また(C-1)に類似する化合物も使用することができ、たとえば窒素原子を介して2以上のアルミニウム化合物が結合した有機アルミニウム化合物を挙げることができる。このような化合物として具体的には、 $(C_2H_5)_2AlN(C_2H_5)Al(C_2H_5)_2$ などを挙げることができる。

【0135】前記(C-2)に属する化合物としては、 $LiAl(C_2H_5)_4$ 、 $LiAl(C_7H_{15})_4$ などを挙げることができる。さらにその他にも、(C)有機金属化合物としては、メチルリチウム、エチルリチウム、プロピルリチウム、ブチルリチウム、メチルマグネシウムブロミド、メチルマグネシウムクロリド、エチルマグネシウムブロミド、エチルマグネシウムクロリド、プロピルマグネシウムブロミド、プロピルマグネシウムクロリド、ブチルマグネシウムブロミド、ブチルマグネシウムクロリド、ジメチルマグネシウム、ジエチルマグネシウム、ジブチルマグネシウム、ブチルエチルマグネシウムなどを使用することもできる。

【0136】また重合系内で上記有機アルミニウム化合物が形成されるような化合物、たとえばハロゲン化アルミニウムとアルキルリチウムとの組合せ、またはハロゲン化アルミニウムとアルキルマグネシウムとの組合せなどを使用することもできる。これらのうち、有機アルミニウム化合物が好ましい。上記のような(C)有機金属化合物は、1種単独でまたは2種以上組み合わせで用いられる。

【0137】本発明に係るオレフィン重合用触媒は、上記のような遷移金属イミン化合物(A)と、(B-1)ホウ素含有有機アルミニウムオキシ化合物、または(B-2)粘土、粘土鉱物もしくはイオン交換性層状化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物(B)と、必要に応じて(C)有機金属化合物とからなる。重合の際には、各成分の使用法、添加順序は任意に選ばれるが、(B)成分として(B-1)ホウ素含有有機アルミニウムオキシ化合物を用い、必要に応じて(C)有機金属化合物を用いる場合には、以下のような方法が例示される。

- (1) 成分(A)と、成分(B-1)とを任意の順序で重合器に添加する方法。
- (2) 成分(A)と成分(B-1)を予め接触させた触媒を重合器に添加する方法。
- (3) 成分(A)を微粒子担体(D)に担持した触媒成分と、成分(B-1)とを任意の順序で重合器に添加する方法。
- (4) 成分(B-1)を微粒子担体(D)に担持した触媒成分と、成分(A)とを任意の順序で重合器に添加する方

法

(5) 成分(A)と成分(B-1)とを微粒子状担体(D)に担持した触媒成分と重合器に添加する方法。

(6) 上記(1)～(5)の各方法において、成分(C)を任意の順序で添加する方法。

【0138】上記の微粒子状担体(D)に成分(A)および成分(B-1)と担持された固体触媒成分は、オレフィンが予備重合されている。また、(B)成分として(B-2)粘土、粘土鉱物またはイオン交換性層状化合物を用いる場合には、通常、(A)成分、(B-2)成分および(C-1)成分を混合させてオレフィン重合用触媒(成分)を調製した。このオレフィン重合用触媒(成分)を重合器に添加する。

【0139】(B-2)成分が粘土または粘土鉱物の場合には、(A)成分中の遷移金属と粘土または粘土鉱物中の水酸基および(C-1)成分中のアルミニウム化合物のモル比が $1:0.1 \sim 1:10^5:0.1 \sim 1 \times 10^7$ 、好ましくは $1:0.5 \sim 1:10^4:0.5 \sim 1 \times 10^6$ となるように接触させるのが好ましい。また、(B-2)成分がイオン交換性層状化合物の場合には、(A)成分中の遷移金属と(C-1)成分中のアルミニウムとの重量比が、(B-2)成分1モル当たり、 $1 \times 10^{-5} \sim 1$ (g): $1 \times 10^{-3} \sim 100$ (g)となるように接触させるのが好ましい。

【0140】接触は空素などの不活性ガス中、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、トルエン、キシレンなどの不活性化炭化水素溶媒中に行ってもよい。接触温度は、 -20°C ～溶媒の沸点の間で行い、特に室温から溶媒の沸点の間で行うのが好ましい。接触させる方法としては、以下のような方法が例示される。

- (1) 成分(A)と成分(B-2)を接触させた後、得られた接触物と成分(C-1)とを接触させる方法。
- (2) 成分(A)と成分(B-1)を接触させた後、得られた接触物と成分(B-2)とを接触させる方法。
- (3) 成分(B-2)と成分(B-1)を接触させた後、得られた接触物と成分(A)とを接触させる方法。
- (4) 成分(A)、成分(B-2)および成分(C-1)を同時に接触させる方法。

【0141】触媒各成分の接触に際し、または接触の後に前述の微粒子状担体(D)を共存させ、あるいは接触させてもよい。このようにして得られたオレフィン重合用触媒(成分)は、単独で重合に用いてもよく、成分(C)と組み合わせる重合に用いてもよい。成分(C)と組み合わせる用いる場合には、オレフィン重合用触媒(成分)と成分(C)とは任意の順序で重合器に添加することができる。この際、オレフィン重合用触媒(成分)の調製時に用いた成分(C-1)と、重合器に添加する成分(C)とは同じであっても異なってもよい。

【0142】また、オレフィン重合用触媒(成分)はオレフィンが予備重合されている。なお、オレフィ

ン重合用触媒(成分)は、後述する脂肪族炭化水素、脂環族炭化水素のスラリーとして重合器に添加する方法が好ましい。本発明に係るオレフィンの重合方法では、上記のようなオレフィン重合触媒の存在下に、オレフィンを重合または共重合することによりオレフィン重合体を得る。

【0143】本発明では、重合は溶解重合、懸濁重合などの液相重合法または気相重合法いずれにおいても実施できる。液相重合法において用いられる不活性化炭化水素媒体として具体的には、プロパン、ブタン、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、デカン、ドデカン、灯油などの脂肪族炭化水素；シクロペンタン、シクロヘキサン、メチルシクロペンタンなどの脂環族炭化水素；ベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素；エチレンクロリド、クロルベンゼン、ジクロロメタンなどのハロゲン化炭化水素またはこれらの混合物などを挙げることができ、オレフィン自身を溶媒として用いることもできる。これらの不活性化炭化水素媒体のうち脂肪族炭化水素、脂環族炭化水素が好ましい。また、重合に用いる α -オレフィン、脂環族ビニル化合物、環状オレフィン自身を溶媒として用いることも好ましい。

【0144】上記のようなオレフィン重合用触媒を用いて、オレフィンの重合を行うに際して、成分(A)は、反応容積1リットル当り、通常 $10^{-8} \sim 10^{-2}$ モル、好ましくは $10^{-7} \sim 10^{-3}$ モルとなるような量で用いられる。成分(B-1)は、成分(B-1)中のアルミニウム原子と、成分(A)中の遷移金属原子(M)とのモル比〔(B-1)/M〕が、通常 $10 \sim 5000$ 、好ましくは $20 \sim 2000$ となるような量で用いられる。

【0145】成分(B-2)は、前述したオレフィン重合用触媒(成分)中の成分として用いられ、オレフィン重合用触媒(成分)は該触媒(成分)中の成分(A)が反応容積1リットル当り、通常 $10^{-8} \sim 10^{-2}$ モル、好ましくは $10^{-7} \sim 10^{-3}$ モルとなるような量で用いられる。成分(C)は、成分(C)と、成分(A)中の遷移金属原子(M)とのモル比〔(C)/M〕が、通常 $0.01 \sim 5000$ 、好ましくは $0.05 \sim 2000$ となるような量で用いられる。また、このようなオレフィン重合触媒を用いたオレフィンの重合温度は、通常 $-50 \sim 200^\circ\text{C}$ 、好ましくは $0 \sim 170^\circ\text{C}$ の範囲である。重合圧力は、通常常圧 $\sim 100\text{kg}/\text{cm}^2$ 、好ましくは常圧 $\sim 50\text{kg}/\text{cm}^2$ の条件下であり、重合反応は、回分式、半連続式、連続式のいずれの方法においても行うことができる。さらに重合を反応条件の異なる2段以上に分けて行うことも可能である。

【0146】得られるオレフィン重合体の分子量は、重合系に水素を存在させるか、または重合温度を変化させることによって調節することができる。このようなオレフィン重合触媒により重合することができるオレフィンとしては、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテ

ン、1-ヘキセン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、3-エチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ヘキセン、4,4-ジメチル-1-ヘキセン、4,4-ジメチル-1-ペンテン、4-エチル-1-ヘキセン、3-エチル-1-ヘキセン、1-オクテン、1-デセン、1-ドデセン、1-テトラデセン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセン、1-エイコセンなどの炭素原子数が2～20の α -オレフィン；スチレン、ジメチルスチレン類、アリルベンゼン、アリルトルエン類、ビニルナフタレン類、アリルナフタレン類などの芳香族ビニル化合物；ビニルシクロヘキサン、ビニルシクロヘプタン、ビニルシクロヘプタン、アリルノルボルナンなどの脂環族ビニル化合物；シクロペンテン、シクロヘプテン、ノルボルネン、5-メチル-2-ノルボルネン、テトラシクロドデセン、2-メチル-1,4,5,8-ジメタノ-1,2,3,4,4a,5,8,8a-オクタヒドロナフタレンなどの環状オレフィン；1,4-ペンタジエン、1,5-ヘキサジエン、1,1-ヘキサジエン、1,5,9-デカトリエンなどの炭素原子数が4～20の鎖状ポリエン；5-エチリデンノルボルナン、ジシクロペンタジエンなどの環状ポリエンなどを調製することができる。

【0147】これらのオレフィンは、単独であるいは2種以上組み合わせて用いることができる。

【0148】

【発明の効果】本発明に係るオレフィン重合触媒は、高い重合活性を有し、分子量分布が狭いオレフィン（共）重合体を得ることができ、かつ2種以上のオレフィンを共重合したときに組成分布が狭いオレフィン共重合体を得ることができる。本発明に係るオレフィンの重合方法は、高い重合活性で、分子量分布が狭いオレフィン（共）重合体を得ることができ、かつ2種以上のオレフィンを共重合したときに組成分布が狭いオレフィン共重合体を得ることができる。

【0149】

【実施例】以下、実施例に基づいて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。なお、本実施例において、極限粘度（ $[\eta]$ ）は、135℃、デカリン中で測定した。

【0150】

【実施例1】ホウ素含有有機アルミニウムオキシ化合物のトルエン溶液(B-1)の調製

十分に窒素置換した内容積500mlのガラス製反応器にトルエン100mlを装入し、次いでn-ブチルボロン酸4.08g（10ミリモル）を装入した。これを-60℃に冷却した後、トリイソブチルアルミニウムのトルエン溶液（0.8モル/リットル）100mlを30分かけて滴下した。滴下終了後、反応温度を1時間かけて-60℃から20℃に昇温し、さらにこの温度で2時間反応させて、目的の成分であるホウ素含有有機アルミニウムオキシ化合物のトルエン溶液(B-1)を得た。この溶液中にはアルミニウム原子が0.4モル/リットル含ま

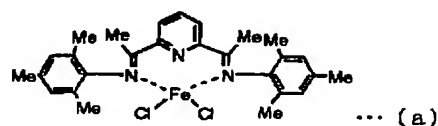
れていた。

【0151】重合

十分に窒素置換した内容積500mlのガラス製オートクレーブにトルエン250mlを装入し、これにエチレンを100リットル/時間で流通させ、50℃で10分間放置した。その後、ジイソブチルアルミニウム（2,6-ジ-*i*-ブチル-4-メチルフェノキシド）を0.1ミリモル、上記で得られた成分(B-1)を0.6ml、下記式(a)で示される遷移金属イミン化合物(A-1)を0.0005ミリモル、この順序で加え重合を開始した。エチレンガスを100リットル/時間の量で連続的に供給し、常圧下、25℃で10分間重合を行った後、少量のメタノールを添加し重合を停止した。重合反応液を大過剰のメタノール-塩酸溶液に加え、得られたポリマーを、130℃で12時間減圧下に乾燥させた。その結果、 $[\eta]$ が2.11dl/gのポリマー1.38gが得られた。

【0152】

【化47】



【0153】

【実施例2】十分に窒素置換した内容積500mlのガラス製オートクレーブにトルエン250mlを装入し、これにエチレンとプロピレンの混合ガス（それぞれ50リットル/時間、150リットル/時間）を流通させ、25℃で10分間放置した。その後、実施例1で得られた成分(B-1)を2.00ml、引き続き、前記式(a)で示される遷移金属イミン化合物(A-1)を0.0005ミリモル加え重合を開始した。エチレンとプロピレンの混合ガスを連続的に供給し、常圧下、25℃で10分間重合を行った後、少量のメタノールを添加し重合を停止した。重合反応液を大過剰のメタノール-塩酸溶液に加え、得られたポリマーを、130℃で12時間減圧下に乾燥させた。その結果、 $[\eta]$ が1.50dl/g、エチレン含量が99.1モル%のポリマー1.25gが得られた。

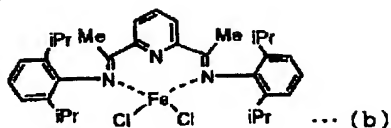
【0154】

【実施例3】十分に窒素置換した内容積500mlのガラス製オートクレーブにトルエン250mlを装入し、これにエチレンを100リットル/時間で流通させ、50℃で10分間放置した。その後、ジイソブチルアルミニウム（2,6-ジ-*i*-ブチル-4-メチルフェノキシド）を0.1ミリモル、上記で得られた成分(B-1)を0.6ml、下記式(b)で示される遷移金属イミン化合物(A-2)を0.0005ミリモル、この順序で加え重合を開始した。エチレンガスを100リットル/時間の量で連続的に供給し、常圧下、50℃で10分間重合を行った

後、少量のメタノールを添加し重合を停止した。重合反応液を大過剰のメタノール-塩酸溶液に加え、得られたポリマーを、130℃で12時間減圧下に乾燥させた。その結果、 $[\eta]$ が0.60 dl/g ポリマー1.22 gが得られた。

【0155】

【化48】



【0156】

【実施例4】十分に窒素置換した内容積500mlのガラス製オートクレープにトルエン250mlを装入し、これにエチレンとプロピレンの混合ガス(それぞれ50リットル/時間、150リットル/時間)を流通させ、25℃で10分間放置した。その後、実施例1で得られた成分(B-1)を2.00ml、引き続き、前記式(b)で示される遷移金属イミン化合物(A-2)を0.005ミリモル加え重合を開始した。エチレンとプロピレンの混合ガスを連続的に供給し、常圧下、50℃で10分間重合を行った後、少量のメタノールを添加し重合を停止した。重合反応液を大過剰のメタノール-塩酸溶液に加え、得られたポリマーを、130℃で12時間減圧下に乾燥させた。その結果、 $[\eta]$ が0.33 dl/g、エチレン含量が98.0mol%のポリマー1.81 gが得られた。

【0157】

【実施例5】触媒の調製

内容積200mlのガラス製反応器にモンモリロナイト(Aldrich 社製、Montmorillonite K10) 5 gを装入し

た。反応器内を十分に窒素置換した後、トルエン50mlを装入し、スラリーとした。これに、室温下、トリメチルアルミニウムのトルエン溶液(1モル/リットル)25mlを30分かけて滴下した。滴下終了後、さらに室温で2時間反応させた。得られたスラリーを濾過し、ヘキサン50mlで2回洗浄後、ヘプタン100mlに再懸濁させてスラリー(d)を得た。

【0158】上記とは別に、十分に窒素置換した内容積200mlのガラス製容器に、ヘプタン5mlを装入した。これにトリイソブチルアルミニウムのヘプタン溶液(0.1モル/リットル)を0.5ml、前記式(a)で示される遷移金属イミン化合物(A-1) 0.01ミリモルをこの順序で加えて5分間接触させた。さらに、上記で得られたスラリー(d) 5mlを加えて接触させることにより、触媒スラリー(e)を得た。

【0159】重合

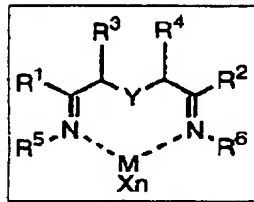
上記とは別に、十分に窒素置換した内容積500mlのガラス製オートクレープにヘプタン250mlを装入し、これにエチレンを100リットル/時間で流通させ、50℃で10分間放置した。その後、ジイソブチルアルミニウム(2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノキシド)を0.1ミリモル、上記で得られたスラリー(e)を全量、この順序で加え重合を開始した。エチレンガスを100リットル/時間の量で連続的に供給し、常圧下、50℃で30分間重合を行った後、少量のメタノールを添加し重合を停止した。重合反応液を大過剰のメタノール-塩酸溶液に加え、得られたポリマーを、130℃で12時間減圧下に乾燥させた。その結果、ポリマー0.80 gが得られた。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明に係るオレフィン重合用触媒の調製工程を示す説明図である

【図1】

(A) 遷移金属成分



M: 周期律表第8～11族の遷移金属原子

R¹～R⁶: ハロゲン、炭化水素基等

Y: 周期律表第15、16族の元素

n: Mの価数

X: ハロゲン等

オレフィン

(B) 有機金属成分

ホウ素含有有機アルミニウムオキシ化合物

(有機金属化合物)

粘土、粘土鉱物または
イオン交換性層状化合物

(C) 第3成分

(微粒子状担体)

フロントページの続き

Fターム(参考) 4J02S AA01A AB00A AC45A AC46A
AC47A BA00A BA02B BB00A
BB02B BC04B BC05B BC08B
BC09B BC15B BC18B BC24B
BC27B BC29B CA30B EA01
EB02 EB04 EB05 EB07 EB08
EB09 EB10 EB12 EB17 EB18
EB21 EC01 EC02 FA01 FA02
FA03 FA04 GB01

